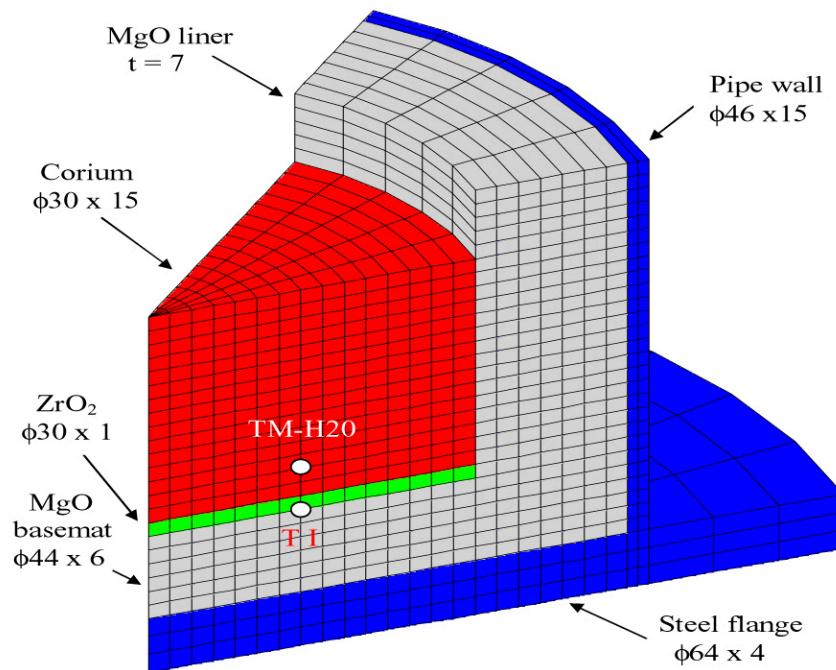


# Jahresbericht 2003 der regulatorischen Sicherheitsforschung



OECD-Projekt MCCI

Computermodellierung des unteren Kesselbereichs nach der Finiten Differenzen Methode

Würenlingen, März 2004



Bundesamt für Energie (Schweiz)  
Office fédéral de l'énergie (Suisse)  
Ufficio federale dell'energia (Svizzera)  
Federal Office of Energy (Switzerland)

**Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen**  
**Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires**  
**Divisione principale della Sicurezza degli Impianti Nucleari**  
**Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate**

**5232 Villigen-HSK**

Tel.: 056 / 310 3916

Fax: 056 / 310 4916

Datum

25. April 2004

AN-Nummer

**HSK-AN-5052**

Typ/Charakter

Bericht

Aktenzeichen

00FBX.FORG

Klassifikation

Bearbeiter

Brigitte Faust

Visum  
Sachbearbeiter:

*Brigitte Faust*  
*Alex*

Vorgesetzter:

Projekt, Thema, Gegenstand (Schlagwörter)

Regulatorische Sicherheitsforschung, Jahresbericht 2003

Seiten 188

Beilagen

Zeichnungen

## Jahresbericht 2003 der Regulatorischen Sicherheitsforschung

### Autoren

#### Projektbegleiterberichte der HSK:

A. Badur	C. Maeder
S. Brosi	W. Pauli
F. Cartier	R. Scheidegger
B. Faust	G. Schoen
E. Frank	S. Schulz
C. Humbel	G. Schwarz
H. Isaak	K. Theiss

#### Berichte zu den Forschungsprojekten:

Paul Scherrer Institut:	H.P. Seifert, S. Ritter, U. Ineichen, U. Tschanz, B. Gerodetti D. Kalkhof, H. Leber, M. Niffenegger, B. Tirbonod R. Macian, M.A. Zimmermann, V.N. Dang Ch. Schuler, M. Boschung, G. Butterweck, C. Wernli S. Bajo, J. Eikenberg, B. Bucher, Ch. Wernli Z.Kopajtic, D.Gavillet, F. Gassmann
KTH Stockholm:	B.R. Sehgal, H.S. Park
ETH Zürich:	A. Becker, D. Giardini
Institut für medizinische Radio- biologie der Uni ZH und des PSI:	A. Anstett, C. Chastel, K. Ballmer, J. Jiricny, R. Jaussi,
OECD Halden Reactor Project:	W. Wiesenack, F. Øvre
US NRC:	Andrew J. Szukiewicz

Verteiler

BFE: G. Schriber, Ch. de Reyff

UAK: P. Hirt

PSI: J. Hadermann, K. Foskolos, R. Andres, R. Jaussi, K. Ballmer

KSA: alle Mitglieder

HSK: EFoKo, ISI

Projektbegleiter: A. Badur, S. Brosi, F. Cartier, B. Faust, E. Frank, C. Humbel, H. Isaak, C. Maeder, W. Pauli, R. Scheidegger,  
G. Schoen, S. Schulz, G. Schwarz, K. Theiss



# INHALTSVERZEICHNIS

EINLEITUNG	4
RIKORR-II	5
DIAGNOSTIK	35
STARS-IV	67
HUMAN RELIABILITY ANALYSIS HRA	85
RADIOSENSITIVITÄT	97
ANGIOGENESE	104
ZUSAMMENARBEIT IN DER DOSIMETRIE	109
ZUSAMMENARBEIT IN DER RADIOANALYTIK	116
AERORADIOMETRIE 2	125
ADPIC-Aktualisierung	130
PHEBUS FP	135
OECD HALDEN REACTOR PROJECT	153
Co-operative Research Activities US-NRC & HSK	160
MONT TERRI	167
OECD-CABRI-Waterloop Project	169
MELT STRUCTURE WATER INTERACTION MSWI	171
OECD-MCCI	179
OECD-OPDE	181
OECD-ICDE	183
OECD-FIRE	184
NESC III	185

## EINLEITUNG

Zur Erhaltung und Verbesserung der Sicherheit aller Kernanlagen bedarf es einer qualifizierten Sicherheitsforschung. Das neue Kernenergiegesetz (KEG) verlangt bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie sowohl die Umsetzung der Betriebserfahrung in die Aufsichtspraxis, als auch die Berücksichtigung des neuesten Standes von Wissenschaft und Technik (Art. 4a KEG). Hierfür fördert der Bund angewandte Forschung insbesondere für die Sicherheit der Kernanlagen und der nuklearen Entsorgung (Art. 86 KEG). Angesichts des begrenzten Forschungsbudgets muss die Organisation und Steuerung der Forschung effektiv und effizient erfolgen. Dies beinhaltet eine sorgfältige Auswahl der Forschungsthemen, effektive Mittelverwendung und eine möglichst direkte Umsetzung der gewonnenen Erkenntnisse. Die Schweiz beteiligt sich an nationalen und internationalen Projekten. Durch Kooperation mit ausländischen Universitäten und Behörden erzielt sie mit dem zur Verfügung stehenden Geld gut abgesicherte Ergebnisse, kann Synergien nutzen und ihre Attraktivität als Forschungs- und Industriestandort erhalten. Besonders wichtig ist der Erfahrungsaustausch mit anderen Sicherheitsbehörden. Eine Rolle spielen allerdings auch die Kosteneffizienz und eine mittelfristige Planungssicherheit für die Forschungspartner.

Das zunehmende Alter der Kernkraftwerke, der Kostendruck auf die Betreiber, politische Probleme bei der nuklearen Entsorgung, die Gefahr des abnehmenden Expertenwissens durch den Generationenwechsel und der sinkende Stellenwert der Kernenergie in der Ausbildung von Fachleuten verlangt besondere Effizienz, Effektivität, Ausgewogenheit und Nachvollziehbarkeit. Die Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) verbindet deshalb in ihrer Aufsicht risiko-, prozess- und ergebnisorientierte Ansätze. Zusammen mit einer wirkungsvollen Verwaltungsführung entsteht ein neues ganzheitliches Konzept, die sogenannte integrierte Aufsicht.

Die regulatorische Sicherheitsforschung hat sich im Jahr 2003 abhängig von den praktischen Bedürfnissen sowie aktuellen und künftigen Herausforderungen der Kernenergienutzung auf die nachfolgend aufgeführten Fachgebiete konzentriert:

**Reaktorsicherheit:** Die Reaktorsicherheit beinhaltet die Sicherheit des Gesamtsystems wie auch der einzelnen Komponenten. Das Augenmerk richtet sich zudem auf die betriebliche Organisation und die Verbindungsstellen zum Strahlenschutz. Durch das zunehmende Alter der Kernanlagen stehen im Vordergrund die Materialforschung (mechanische, thermische, chemische und strahleninduzierte Alterung bzw. Versprödung der Werkstoffe), die Stör- und Unfallforschung (wesentlich unterstützt durch die deterministische und probabilistische Sicherheitsanalyse) sowie der Ersatz der ursprünglichen durch rechnergestützte Leittechnik.

**Strahlenschutz:** Der Strahlenschutz dient dem Schutz des Personals und der Umgebung der Kernanlagen vor ionisierender Strahlung. Dieser Bereich umfasst zudem auch radiologische und sicherheitstechnische Aspekte der Wasserchemie, wobei diese zur Beurteilung möglicher Korrosion metallischer Komponenten eine wesentliche Rolle spielen. Radioanalytik, Dosimetrie, Entnahme radioaktiver Proben aus Systemen und Freimessungen sind für den Schutz vor Strahlung relevant. Der Erhaltung von Expertenwissen kommt in diesem Bereich nicht nur für den Betrieb der Kernanlagen, sondern auch für deren Rückbau eine besondere Bedeutung zu.

**Radioaktive Abfälle, Stilllegung und Endlagerung:** Vom koordinierten Sammeln radioaktiver Abfälle, deren Aufbewahrung, Behandlung bzw. Konditionierung bis zum Transport in ein Lager ist ein sorgfältiger Umgang unabdingbar. Analysen bringen den Nachweis der Endlagersicherheit. In der Forschung spielt neben der Beschaffenheit des Opalinustons auch die Auswertung von Demonstrationsversuchen eine wesentliche Rolle.

**Querschnittsthemen:** Übergreifend schaffen diese Themen eine Verbindung zu den oben aufgeführten „klassischen“ Themen der nuklearen Sicherheit. Von diesen Fragestellungen sind auch andere Industriezweige betroffen (z.B. Arbeitssicherheit, menschliche Leistungsfähigkeit, Organisationskultur, Ergonomie). Wichtig sind auch politische, gesellschaftliche und wirtschaftliche Aspekte wie Deregulierung, Soziologie, Ausbildung, Personalauswahl, Umgang mit menschlichem Fehlverhalten und Kommunikation.



Datum: 16. Januar 2004

Von: W. Pauli

## **Begutachtung 2003 für das Projekt RIKORR-II**

### **Einleitung**

Das Forschungsprogramm RIKORR-II (2003 – 2005) befasst sich in einem ersten Teil mit dem Korrosionsrisswachstum in ferritischen Reaktordruckbehälter(RDB)-Stählen unter stationären und transienten Siedewasserreaktor(SWR)-Bedingungen bei Normalwasserchemie-(NWC) und Wasserstoffchemiefahrweise (HWC) und stellt eine logische Fortführung der Projekte RIKORR-I (2000 – 2002) und SpRK (1996 – 1999) dar.

In einem zweiten Teil wird im Rahmen eines internationalen Ringversuches sowie einer Zusammenarbeit mit dem Fracture Research Institute der Tohoku Universität (Japan) das Risskorrosionsverhalten von Inconel-182-Mischnähten zwischen RDB- und hochlegierten rostfreien Stählen/Nickelbasislegierungen unter SWR/NWC-Bedingungen untersucht.

Die Forschungsarbeiten erfolgen am Paul Scherrer Institut, Labor für Werkstoffverhalten. Die Arbeiten sind sehr gut geplant und mit hoher Fachkenntnis durchgeführt. Das PSI präsentiert die Resultate zweimal jährlich der HSK, wobei das weitere Vorgehen abgestimmt wird.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Die Parameterstudien zum Einfluss von Temperatur und Belastungsfrequenz auf das Korrosionsverhalten in der Wärmeeinflusszone von RDB-Schweissnähten unter SWR/NWC-Bedingungen wurden plangemäss abgeschlossen. Die Umbauarbeiten an den PSI-Heisswasserkreisläufen zur Implementierung der HWC-Fahrweise sind durchgeführt und mit den erforderlichen Sicherheitseinrichtungen versehen. Die Kreisläufe stehen für die kommenden Versuche zeitgerecht bereit. Der Schwerpunkt der Forschung lag bei der Untersuchung des Einflusses von kurzzeitigen Chlorid-Transienten auf das Spannungsrisskorrosion(SpRK)-Risswachstum in verschiedenen ferritischen RDB-Stählen unter SWR/NWC-Bedingungen.

Im Rahmen des internationalen Ringversuches erfolgten 2 Langzeitversuche zum SpRK - Risswachstumsverhalten in kaltverformten Inconel-600 und in der Übergangszone von Inconel-182-Schweissgut zum RDB-Stahl. Der Ringversuch befindet sich in der Phase 2 und verläuft plangemäss.

Die Zielsetzungen für das Jahr 2003 wurden damit erreicht. Es sind im Zusammenhang mit den für die Sicherheit der SWR-Primärkreis Komponenten relevanten Beurteilungskriterien wichtige Erkenntnisse gewonnen worden. Das Projekt ist international sehr gut abgestützt.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die sicherheitstechnische Aufsicht im Bereich des Primärkreises von SWR konzentriert sich, unter Berücksichtigung des Alters der bestehenden Kernkraftwerke, auf die Beurteilung des Zustands der nichtaustauschbaren Komponenten, mit Schwerpunkt auf den Reaktordruckbehälter. Dabei stellen aus heutiger Sicht die Versprödung durch Neutronenstrahlung, die Ermüdung durch Temperatur- und Drucktransienten sowie die Risskorrosion und Korrosion die relevanten Schädigungsmechanismen dar. Zur Beurteilung der Auswirkungen des Dauerbetriebs und von Störfällen ist dabei das Verstehen der Schädigungsmechanismen aus wechselnder Last (Spannungen, Deformationen) und aus Änderungen in der Wasserchemie auf die Risskorrosion und Korrosion von zentraler Bedeutung. Das Projekt RIKORR-II spricht diese Themen direkt an und schliesst dabei die Trends im modernen Betrieb der Kernkraftwerke (HWC-, Noble Metal Chemical Additives NMCA-Fahrweisen) vorbildlich mit ein. Es werden für die Aufsicht wichtige Erkenntnisse zur Beurteilung von Störfällen gewonnen.

Die Arbeiten im Zusammenhang mit dem Ringversuch zum Risskorrosionsverhalten von Inconel-182-Mischnähten zwischen RDB- und hochlegierten rostfreien Stählen/Nickelbasislegierungen unter SWR/NWC-Bedingungen sind vor dem Hintergrund jüngster Schadenfälle hochaktuell und unterstützen die Aufsicht der HSK. Dabei spielt die hohe internationale Abstützung des Projektes eine für die Schweiz wichtige Rolle.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das Forschungsprojekt wird im Rahmen des Projektplanes und auf der Basis der gewonnenen Erkenntnisse weitergeführt. Aus der Sicht der HSK sind keine Verbesserungen notwendig. Das vom PSI vorgeschlagene Programm für das Jahr 2004 ist durch die HSK akzeptiert.

**RIKORR-II****Risskorrosion in druckführenden Komponenten  
des Primärkreislaufes von SWR**

Autor und Koautoren	H.P. Seifert, S. Ritter, U. Ineichen, B. Gerodetti
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	Paul Scherrer Institut, CH-5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 44 02, <a href="mailto:hans-peter.seifert@psi.ch">hans-peter.seifert@psi.ch</a> , <a href="http://www.psi.ch">www.psi.ch</a> und <a href="http://lww.web.psi.ch/lwi0.htm">http://lww.web.psi.ch/lwi0.htm</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	100347 / 150432
Dauer des Projekts (von – bis)	1. 1. 2003 bis 31. 12. 2005

**ZUSAMMENFASSUNG**

Im vorliegenden Forschungsprojekt wird das Risskorrosionsverhalten von niedriglegierten Reaktordruckbehälter(RDB)-Stählen (unbeeinflusstes Grundwerkstoff und Wärmeeinflusszonen) und von RDB-Schweissgutwerkstoffen unter transienten und stationären Siedewasserreaktor(SWR)-Betriebsbedingungen bei Normalwasserchemie (NWC)- und Wasserstoffchemie(HWC)-Fahrweise experimentell untersucht. Versuche zum Risskorrosionsverhalten in Inconel-182-Schweissgut von Mischnähten und im Übergangsbereich zum angrenzenden RDB-Stahl unter SWR/NWC-Bedingungen im Rahmen eines internationalen Ringversuchs sowie einer Zusammenarbeit mit der Tohoku-Universität aus Japan ergänzen das Untersuchungsprogramm.

Während der Berichtsperiode erfolgten umfangreiche Umbauarbeiten zur Implementierung der HWC-Fahrweise in den PSI-Heisswasserkreisläufen. Neben dem Abschluss der Parameterstudie zum Einfluss der Temperatur und Belastungsfrequenz auf die Schwingrisskorrosion in der Wärmeeinflusszone von RDB-Schweissnähten unter SWR/NWC-Bedingungen wurden zwei Langzeitversuche zum Spannungsrissskorrosions(SpRK)-Risswachstumsverhalten in kaltverformtem Inconel-600 und in der Übergangzone von Inconel-182-Schweissgut zum RDB-Stahl durchgeführt. Schwerpunktmässig wurde der Einfluss von kurzzeitigen Chlorid-Transienten auf das SpRK-Risswachstum in verschiedenen ferritischen RDB-Stählen unter SWR-NWC-Bedingungen untersucht. Diese Experimente lieferten folgende bedeutende Ergebnisse:

Unter SWR/NWC-Bedingungen ( $\geq 400$  ppb  $O_2$ ) führte im untersuchten Spannungsintensitätsfaktorbereich  $K_I$  von 32 bis 62  $MPa \cdot m^{1/2}$  die Zugabe von 10 ppb ( $>$  EPRI Action Level Grenzwert 1) bis 50 ppb Chlorid ( $>$  EPRI Action Level Grenzwert 2) in allen RDB-Stählen z. T. schon nach einer sehr kurzen Inkubationsphase von wenigen Stunden zu einer Beschleunigung des SpRK-Risswachstums von mindestens einer Grössenordnung und zu stationären SpRK-Risswachstumsraten oberhalb der BWRVIP-60 SpRK Grenzkurve 2. Die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 für Wasserchemietransienten deckt deshalb Chlorid-Transienten oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 1 nicht konservativ ab. In mehreren Fällen wurde zudem nach der Rückkehr zu höchstreinem Wasser ( $< 1$  ppb Chlorid) nach schweren und langanhaltenden Chlorid-Transienten ( $>$  EPRI Action Level Grenzwert 2) über sehr lange Zeiträume von mindestens 1000 h schnelles und langanhaltendes SpRK-Risswachstum mit Risswachstumsraten deutlich oberhalb der BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 beobachtet.



## 0. Abkürzungen, Symbole und Einheiten

### 0.1 ABKÜRZUNGEN

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
<b>ASME</b>	American Society of Mechanical Engineers
<b>ASME BPV</b>	ASME Boiler and Pressure Vessel Code
<b>ASTM</b>	American Society of Testing and Materials
<b>ASTM E 399</b>	Test Method for Plane-Strain Fracture Toughness of Metallic Materials
<b>BNC(T)</b>	Blunt Notch Compact Tension Specimen: Kompaktzugprobe mit Rundkerbe
<b>BWRVIP</b>	Boiling Water Reactor Vessel and Internals Project
<b>C(T)</b>	Compact Tension Specimen: Kompaktzugprobe
<b>CIEMAT</b>	Research Centre for Energy, Environment and Technology, Spanien
<b>CSNI</b>	Committee on the Safety of Nuclear Installations
<b>DCPD</b>	Direct Current Potential Drop Method: Gleichstrompotentialsonde
<b>DO</b>	Dissolved Oxygen: Konzentration an gelöstem Sauerstoff
<b>DRK</b>	Dehnungsinduzierte Risskorrosion
<b>DSA</b>	Dynamic Strain Ageing: Dynamische Reckalterung
<b>DWR</b>	Druckwasserreaktor
<b>EAC</b>	Environmentally-Assisted Cracking
<b>ECP</b>	Electrochemical Corrosion Potential: Freies Korrosionspotential
<b>EPRI</b>	Electric Power Research Institute
<b>GE</b>	General Electric
<b>GE CRD</b>	General Electric Corporate Research & Development Center
<b>GE NE</b>	General Electric Nuclear Energy
<b>HSK</b>	Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen
<b>HWC</b>	Hydrogen Water Chemistry, Wasserstoffchemiefahrweise
<b>ICG-EAC</b>	International Co-operative Group of Environmentally-Assisted Cracking of LWR Materials
<b>KKL</b>	Kernkraftwerk Leibstadt

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
<b>KKM</b>	Kernkraftwerk Mühleberg
<b>KTA</b>	Kerntechnischer Ausschuss
<b>KTA 3201.1</b>	Sicherheitstechnische Regel des KTA 3201.1: Komponenten des Primärkreislaufes von LWR Teil 1: Werkstoffe und Erzeugnisformen
<b>LWV</b>	Labor für Werkstoffverhalten
<b>LWR</b>	Leichtwasserreaktor
<b>MPA</b>	Staatliche Materialprüfungsanstalt, Universität Stuttgart, Deutschland
<b>NEA</b>	Nuclear Energy Agency
<b>NMCA</b>	Noble Metal Chemical Addition, Edelmetalleinspeisung
<b>NRC</b>	National Regulatory Commission, USA
<b>NRI</b>	Nuclear Research Institute, Rez, Tschechische Republik
<b>NWC</b>	Normal Water Chemistry, Normalwasserchemiefahrweise
<b>OECD</b>	Organisation for Economic Co-operation and Development
<b>OECD/NEA/ CSNI IAGE</b>	OECD/NEA/CSNI Principal Working Group Integrity and Ageing of Structures and Components
<b>RDB</b>	Reaktordruckbehälter
<b>REM</b>	Rasterelektronenmikroskop(ie)
<b>SpRK</b>	Spannungsrisskorrosion
<b>SRL</b>	Slow Rising Load Test: Versuch mit monoton ansteigender Last mit konstanter Lastrate
<b>SSRT</b>	Slow Strain Rate Test: langsamer Zugversuch mit konstanter Dehnrate
<b>SSY</b>	Small Scale Yielding: Kleinstbereichsfließen
<b>SWE</b>	Standard-Wasserstoffelektrode
<b>SWR</b>	Siedewasserreaktor
<b>SwRK</b>	Schwingrisskorrosion
<b>VGB</b>	Technische Vereinigung der Grosskraftwerksbetreiber, Deutschland
<b>VTT</b>	Technisches Forschungszentrum Finnland
<b>WEZ</b>	Wärmeeinflusszone
<b>WKP</b>	Wiederkehrende Prüfung

## 0.2 SYMBOLE UND EINHEITEN

Symbol	Einheit	Bezeichnung
$A_5$	%	Bruchdehnung
$\Delta a$	$\mu\text{m}$ oder $\text{mm}$	Rissfortschritt
$\Delta a/\Delta N$	$\mu\text{m}/\text{Zyklus}$	Rissfortschritt pro Zyklus
$da/dt$	$\text{m}/\text{s}$	Risswachstumsgeschwindigkeit
$da/dt_{\text{DRK}}$	$\text{m}/\text{s}$	DRK-Risswachstumsrate in „Slow Rising Load“ Versuchen
$da/dt_{\text{SpRK}}$	$\text{m}/\text{s}$	SpRK-Risswachstumsrate in Versuchen unter konstanter Last
$da/dt_{\text{SwRK}}$	$\text{m}/\text{s}$	SwRK-Risswachstumsrate in zyklischen Versuchen
$d\text{COD}_{\text{LL}}/dt$	$\text{mm}/\text{s}$	Rissöffnungsrate an der Lastlinie
$\delta$	$\text{mm}$	Probenaufweitung
$\Delta K$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors
$\Delta K_{\text{SwRK}}$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	$\Delta K$ -Schwellwert für SwRK
$\Delta t_{\text{Decline}}$	$\text{h}$ oder $\text{s}$	„Decline Time“, Dauer der Lastreduktionsphase $K_{\text{max}} \rightarrow K_{\text{min}}$
$\Delta t_{\text{Hold}}$	$\text{h}$	„Hold Time“ Haltedauer bei konstanter Maximallast $K_{\text{max}}$
$\Delta t_{\text{Rise}}$	$\text{h}$ oder $\text{s}$	„Rise Time“, Dauer der Lastanstiegsphase $K_{\text{min}} \rightarrow K_{\text{max}}$
ECP	$\text{mV}_{\text{SWE}}$	freies Korrosionspotential
$\kappa$	$\mu\text{S}/\text{cm}$	spezifische elektrische Leitfähigkeit
$K_I$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	Spannungsintensitätsfaktor
$K_{I,i}$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	$K_I$ -Wert bei Rissinitiierung durch DRK
$K_{\text{ISCC}}$	$\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$	$K_I$ -Schwellenwert für SpRK
$\nu$	$\text{Hz}$	Belastungsfrequenz
$O_2$	$\text{ppb}$ oder $\text{ppm}$	Konzentration an gelöstem Sauerstoff
$R$	-	Verhältnis von Unter- zur Oberlast: $R = K_{\text{min}} / K_{\text{max}}$
$R_p$	$\text{MPa}$	Streckgrenze
$R_m$	$\text{MPa}$	Zugfestigkeit
$T$	$^{\circ}\text{C}$	Temperatur
$Z$	%	Brucheinschnürung

## 1. Einleitung

Die regulatorische Sicherheitsforschung im Bereich der Materialwissenschaften konzentriert sich zur Zeit auf die Alterungsüberwachung und die Zustandsbeurteilung von sicherheitstechnisch wichtigen und z. T. nicht austauschbaren, druckführenden Komponenten im Primärkreislauf von Leichtwasserreaktoren (LWR). Vorausschauend auf die zukünftige Laufzeit der Kernkraftwerke und der möglichen Lebensdauererlängerung der Betriebsbewilligungen über 40 Jahre hinaus stellen sich Fragen in Bezug auf den Zustand der Komponenten und hinsichtlich der wichtigsten Schädigungsmechanismen. Aus heutiger Sicht sind dies Versprödung durch Bestrahlung, Ermüdung sowie Risskorrosion und Korrosion.

Während des Reaktorbetriebes können sich bei ungünstigen Randbedingungen unter dem gleichzeitigen Einfluss des Reaktorkühlmittels und der thermomechanischen Betriebsbeanspruchungen sowie von Eigenspannungen (z. B. in Schweißnähten) Korrosionsrisse in druckführenden Komponenten bilden und ausbreiten. Die Gewährleistung eines sicheren Anlagenbetriebes setzt deshalb eine genaue Kenntnis der Systembedingungen voraus, die zur Risskorrosion führen können. Zuverlässige quantitative Daten zur Initiierung und zum Wachstum von Korrosionsrissen sowie ein genaues Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen sind wesentlich für eine genaue Bewertung der möglichen Auswirkungen der Risskorrosion auf die Strukturintegrität, für die Festlegung/Überprüfung der Inspektionsintervalle der Wiederkehrenden Prüfung (WKP) und für die Definition und Qualifizierung von gezielten Abhilfe- und Gegenmassnahmen.

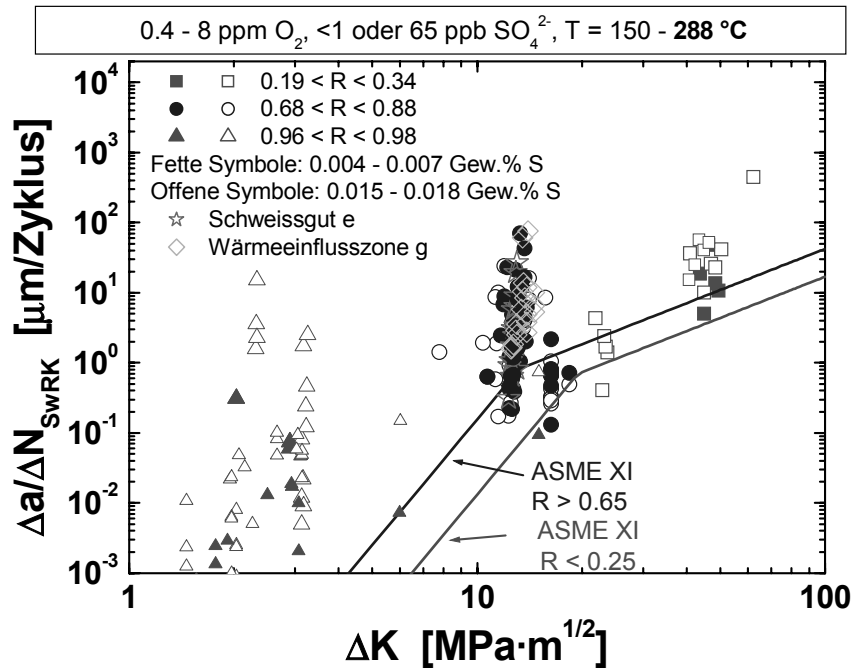
### 1.1 TECHNISCHER HINTERGRUND DES FORSCHUNGSVORHABENS

Das vorliegende Forschungsprogramm RIKORR-II (2003 – 2005) befasst sich mit dem Korrosionsrisswachstum in ferritischen Reaktordruckbehälter(RDB)-Stählen unter stationären und transienten Siedewasserreaktor(SWR)-Bedingungen bei Normalwasserchemie-(NWC) und Wasserstoffchemiefahrweise (HWC) und stellt eine logische Fortführung der Projekte RIKORR-I (2000 – 2002) [1] und SpRK (1996 – 1999) [2] dar. In einem zweiten Teil wird im Rahmen eines internationalen Ringversuches sowie einer Zusammenarbeit mit dem Fracture Research Institute der Tohoku Universität (Japan) das Risskorrosionsverhalten von Inconel-182-Mischnähten zwischen RDB- und hochlegierten rostfreien Stählen/Nickelbasislegierungen unter SWR/NWC-Bedingungen untersucht.

#### 1.1.1 Risskorrosion in RDB-Stählen unter SWR/NWC und SWR/HWC-Bedingungen

Trotz der guten Betriebserfahrung [1 – 7] wurde von einzelnen Fachleuten zu Beginn der 90er-Jahre auf Grundlage von Ergebnissen älterer Laboruntersuchungen die Befürchtung geäußert, dass im stationären Dauerbetrieb von SWR schnelles Risswachstum im RDB infolge Spannungsrisskorrosion (SpRK) auftreten könnte [2]. Im Rahmen des SpRK-Projektes [2] konnte jedoch gezeigt werden, dass bei Einhaltung der EPRI-Wasserchemierichtlinien für einen gemäss den kerntechnischen Regelwerken hergestellten und wärmebehandelten RDB im transientenfreien SWR-Dauerbetrieb keine Gefährdung durch SpRK besteht und für den RDB-Grundwerkstoff bei einer Betriebstemperatur von 270 – 288 °C bis zu hohen Werten des Spannungsintensitätsfaktors von  $60 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$  kein technisch signifikantes SpRK-Risswachstum auftritt [2, 4].

Im Rahmen des nachfolgenden RIKORR-I-Programmes [1] wurde hingegen in Übereinstimmung mit der Betriebserfahrung [1 – 7] unter langsam monoton ansteigender oder niederzyklischer Belastung selbst bei optimaler SWR/NWC-Fahrweise für die untersuchten RDB-Stähle eine ausgeprägte Anfälligkeit für Dehnungsinduzierte Risskorrosion (DRK) und niederzyklische Schwingrisskorrosion (SwRK) beobachtet. Die ASME XI „Wet“ Referenz-Ermüdungsrisswachstumskurven im ASME BPV Regelwerk können hier bei niederfrequenter ( $\leq 10^{-2}$  Hz) zyklischer Belastung unter SWR/NWC-Bedingungen sowohl in RDB-Grund- als auch Schweißgutwerkstoffen deutlich überschritten werden und sind deshalb im Gegensatz zu hohen Belastungsfrequenzen nicht konservativ (Figur 1) [1, 8]. Diese niederzyklischen Belastungen sind charakteristisch für Anfahr- und Abfahrvorgänge sowie für spezielle Betriebszustände (z. B. Hot Stand-by) mit Temperaturschichtungen.

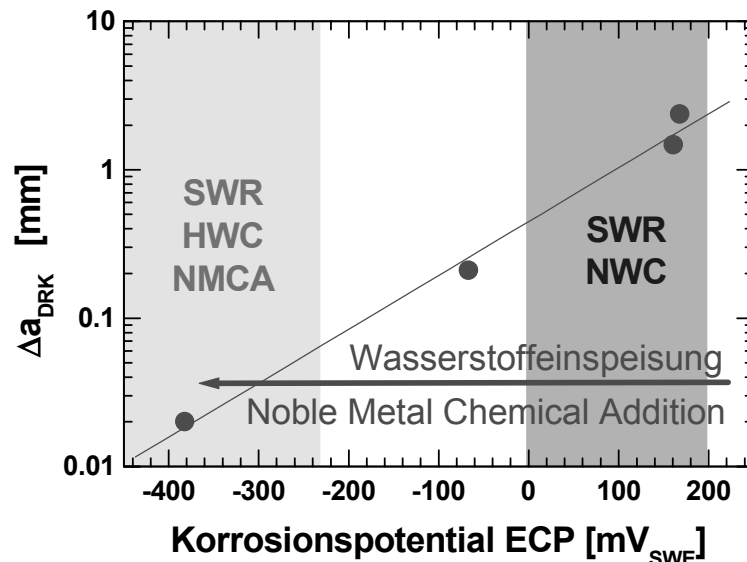


**Figur 1:** Korrosionsgestützter Rissfortschritt pro Zyklus  $\Delta a/\Delta N_{\text{SWRK}}$  in Abhängigkeit der aufgeprägten Schwingbreite des Spannungsintensitätsfaktors  $\Delta K$  für verschiedene Lastverhältnisse  $R$  und RDB-Werkstoffe bei niederfrequenter ( $\leq 10^{-2}$  Hz) zyklischer Belastung unter simulierten stationären und transienten SWR/NWC-Bedingungen. Die Referenzermüdungsrisswachstumskurven des ASME BPV Regelwerkes werden dabei bei niederfrequenter Belastung ( $\leq 10^{-2}$  Hz) z. T. deutlich überschritten und sind deshalb für diese Bedingungen nicht konservativ.

Des Weiteren wurde in ersten Experimenten beobachtet, dass die bisher als sehr konservativ betrachtete BWRVIP-60 SpRK Grenzkurve 1 für den transientenfreien, stationären SWR-Leistungsbetrieb bei mittleren Temperaturen (180 – 270 °C) für RDB-Stähle und –Schweissgutwerkstoffe mit einer Anfälligkeit für Dynamische Reckalterung (DSA) sowie in Wärmeeinflusszonen von Schweissnähten mit ausgeprägter Aufhärtung ( $\geq 350$  HV5) und hohem S-Gehalt auch bei 288 °C deutlich überschritten werden können [1, 9]. Die BWRVIP-60 SpRK Grenzkurve 2, welche sowohl Wasserchemie- und kleinere Lastschwankungen (die nicht durch die Ermüdungsauslegung und –überwachung erfasst werden) mit abdecken soll, wurde sowohl während Chlorid-Transienten ( $>$  EPRI Action Level Grenzwert 2) als auch bei kleinen Lastfluktuationen mit hohem Lastverhältnis  $R > 0.95$  („Ripple Loading“) z. T. deutlich überschritten [1, 9]. Im Gegensatz zum RDB-Grundwerkstoff im stationären SWR-Leistungsbetrieb ( $T \approx 270 - 290$  °C,  $\approx$  statische Belastung) sind die SpRK-Grenzkurven für den Speisewasserstutzen und die Stutzenkante ( $T \approx 220 - 270$  °C, kleine Lastfluktuationen nicht ausschliessbar) möglicherweise nicht konservativ.

Weltweit wird in SWR (u. a. auch im KKM) nun vermehrt die HWC-Fahrweise alleine oder in Kombination mit der Edelmetalltechnologie (Noble Metal Chemical Addition, NMCA) zur Reduktion des Risskorrosionsrisikos in Strukturwerkstoffen aus rostfreiem Stahl oder Nickelbasislegierungen eingesetzt [10]. In beiden Fällen führt die Rekombination des zudosierten Wasserstoffs mit dem Radiolyse-Sauerstoff zu Wasser zu einer Abnahme des Sauerstoffgehalts und des Korrosionspotentials ECP und somit zu einer Abnahme der SpRK-Risswachstumsraten in diesen Materialien. Es stellt sich deshalb auch die Frage, ob und wie weit die HWC- oder NMCA-Fahrweise insbesondere unter den oben genannten kritischen Bedingungen, bei denen die Risswachstumskurven für den SWR/NWC-Betrieb nicht konservativ sind, eine Schutzwirkung bezüglich der Risskorrosion und ein Absenken der Korrosionsrisswachstumsraten in RDB-Stählen bewirkt.

Versuche am PSI unter langsam ansteigender Belastung mit konstanter Lastrate in wasserstoff-freiem Heisswasser mit unterschiedlichen Sauerstoffgehalten und Untersuchungen unter sauerstofffreien DWR-Bedingungen mit ferritischen RDB-Stählen lassen insbesondere bei der niederfrequenten SwRK und DRK (Figur 2) einen äusserst positiven Effekt der HWC/NMCA-Fahrweise erwarten. Aufgrund von theoretischen Modellvorstellungen [3, 11] und Untersuchungen [12] mit rostfreien Stählen kann unter HWC/NMCA-Bedingungen auch eine deutlich höhere Toleranz gegenüber gefährlichen Verunreinigungen wie Chlorid erwartet werden.



**Figur 2:** Einfluss des Korrosionspotentials ECP auf das DRK-Risswachstum  $\Delta a_{DRK}$  in einem RDB-Stahl mit hohem S-Gehalt in Heisswasser mit unterschiedlichen Sauerstoffgehalten in Versuchen mit langsam ansteigender Last mit konstanter Lastrate unter identischen Belastungsbedingungen. Zu Vergleichszwecken sind die typischen ECP-Bereiche für die SWR/NWC- und SWR/HWC/NMCA-Fahrweise eingetragen.

### 1.1.2 Risskorrosion in Inconel-182-Mischnähten

In den letzten Jahren sind sowohl in DWR [13] als auch SWR [14] SpRK-Rissbildungen im Inconel-182-Schweissgut von Mischnähten zwischen ferritischem RDB-Stahl und Nickelbasislegierungen (Inconel-600) oder austenitisch rostfreien Stählen (AISI 304 L, 316 L, ...) aufgetreten, die zum Teil zu Leckagen geführt haben und teure Reparaturmassnahmen und zusätzliche Inspektionen zur Folge hatten. In SWR wurden SpRK-Rissbildungen in der Kernmantel-Support-Struktur (Tsuruga), Durchführungen in der RDB-Bodenkalotte (Hamaoka 1) oder in Safe-End-Verbindungen zwischen RDB-Stützen und diversen Rohrleitungen (Chinsan, Duanne Arnold, ...) beobachtet. Zwar beschränkten sich die meisten dieser Rissbildungen fast immer auf das Inconel-182-Schweissgut und auf den angrenzenden hochlegierten Stahl, dennoch stellt sich die sicherheitstechnisch wichtige Frage, ob sich ein SpRK-Risswachstum im Inconel-182-Schweissgut allenfalls in den RDB-Stahl fortsetzen kann.

Zur Festlegung der WKP-Inspektionsintervalle und für Sicherheitsbewertungen werden zuverlässige SpRK-Risswachstumsraten in Inconel-182-Schweissgut in Abhängigkeit von Umgebungs-, Belastungs-, Material- und Schweissparametern benötigt. Im Vergleich zu den rostfreien Stählen liegen für Inconel-182 nur sehr wenig qualifizierte Risswachstumsdaten vor und diese variieren selbst unter vergleichbaren Umgebungsbedingungen über mehrere Grössenordnungen [15]. Zudem deuten einzelne Laboruntersuchungen darauf hin, dass die HWC-Fahrweise bzw. ein Absenken des Korrosionspotentials zumindest bei gewissen Schweissgütern möglicherweise nicht zu einer signifikanten Reduktion der SpRK-Risswachstumsgeschwindigkeit führt [15].

## 1.2 ZIELSETZUNGEN UND ARBEITSPROGRAMM DES FORSCHUNGSVORHABENS

Im Rahmen des vorliegenden Forschungsprojektes wird das Risskorrosionsverhalten von ferritischen RDB-Stählen und von Inconel-182-Mischnähten unter stationären und transienten SWR/NWC und HWC-Betriebsbedingungen experimentell untersucht. Im Vordergrund steht die Ermittlung belastbarer Risswachstumsraten, die für Strukturintegritätsbewertungen im Rahmen der periodischen Sicherheitsanalyse und für die Festlegung/Überprüfung der Inspektionsintervalle der WKP bei Rissanzeigen verwendet werden können.

Das Arbeitsprogramm des Projektes setzt sich aus den folgenden drei Hauptteilen zusammen:

- Erweiterung der SpRK-, DRK- und SwRK-Risswachstumsdatenbasis unter SWR/NWC-Bedingungen. Im Vordergrund stehen hier weitere Untersuchungen zum SpRK-Risswachstumsverhalten von RDB-Schweißnähten und ihren WEZ sowie zum Einfluss von kurzzeitigen Chlorid-Transienten.
- Bewertung der Schutzwirkung der HWC-Fahrweise bezüglich der Risskorrosion in RDB-Stählen bei Systembedingungen (Umgebung/Belastung/Werkstoff), unter denen bei der NWC-Fahrweise die ASME XI SwRK- und die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurven nicht konservativ sind und möglicherweise mit relevantem Korrosionsrisswachstum zu rechnen ist.
- Teilnahme am internationalen ICG-EAC-Ringversuch zur Risskorrosion in Nickel-Basis-Legierungen und Mischnähten unter SWR- und DWR-Bedingungen.

Das Projekt soll mithelfen, bestehende Wissenslücken und Unsicherheiten zu beseitigen, um die tatsächlich vorhandenen Sicherheitsmargen besser abschätzen zu können. Zusätzlich wird es eine grobe, quantitative Abschätzung der Erhöhung der Sicherheitsmargen durch die HWC-Fahrweise bezüglich der Risskorrosion in ferritischen RDB-Stählen ermöglichen.

## 1.3 ZIELSETZUNGEN UND ARBEITSPROGRAMM FÜR 2003

Die wesentlichen Zielsetzungen und geplanten Arbeiten für das Jahr 2003 umfassten:

- Abschluss der Parameterstudie zum Einfluss von Temperatur und Belastungsfrequenz auf das Korrosionsrisswachstum in der WEZ der Biblis C RDB-Umfangsschweißnaht unter SWR/NWC-Bedingungen (zwei Versuche bei 150 und 200 °C). Eine Diskussion der Ergebnisse befindet sich im Abschlussbericht zum RIKORR-I-Projekt [1].
- Umbau der Heisswasserkreisläufe für Wasserstoffchemiefahrweise (Kap. 2.2).
- Abschluss der Untersuchungen zum Einfluss von Sulfat- und Chlorid-Transienten unter SWR/NWC-Bedingungen (Kap. 2.3).
- ICG-EAC-Inconel- 600/Inconel-182-Ringversuch (Kap. 2.4):
  - Abschluss der Phase 1.
  - Experimente der Phase 2 (4.5 Monate).
- Langzeitversuch (3.5 Monate) zum Korrosionsrisswachstumsverhalten im Übergangsbereich zwischen Inconel-182-Schweißgut und RDB-Stahl unter SWR/NWC-Bedingungen (Kap. 2.5)
- Publikationen/Konferenzbeiträge:
  - Publikation in wissenschaftlicher Zeitschrift [16].
  - NACE Corrosion 2003 (März 2003, San Diego, USA) [17].
  - ICG-EAC 2003 (Mai 2003, Ottawa, Kanada) [18, 19].
  - 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation (August 2003, Stevenson, USA) [20 - 23]
  - EUROCORR 2003 (September 2003, Budapest, Ungarn) [24].

## 2. Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### 2.1 EXPERIMENTELLE DURCHFÜHRUNG

#### 2.1.1 Untersuchte Werkstoffe

Ferritische RDB-Stähle:

In den Experimenten werden fünf verschiedene niedriglegierte RDB-Stähle sowie zwei Schweissnähte und ihre Wärmeeinflusszonen untersucht (Tabelle 1 - 3). Diese Stähle werden weltweit und in schweizerischen Kernkraftwerken in druckumschliessenden Komponenten eingesetzt.

Werkstoff	Bez.	Norm	S-Gehalt [Gew. %]	Wärmebehandlung
<b>20 MnMoNi 5 5</b> ≡ SA 508 Class 3	<b>a</b>	KTA 3201.1	0.004	Härtung: 910 - 920 °C / 6 h / WQ Anlassen: 640 - 650 °C / 9.5 h / OK
<b>SA 508 Class 2</b> ≡ 22 NiMoCr 3 7	<b>b</b>	ASME	0.004	Härtung: 900 °C / 8 h / WQ Anlassen: 600 °C / 9 h / Luft
<b>SA 533 B Class 1</b> ≡ 20 MnMoNi 5 5	<b>c</b>	ASME	0.018	Normalisierung: 915°C / 12 h / Luft Härtung: 860 °C / 12 h / WQ Anlassen: 660 °C / 12 h / OK Spannungsarmglühung: 610°C/40h/OK 550°C/12h/OK 550°C/12h/OK
<b>22 NiMoCr 3 7</b> ≡ SA 508 Class 2	<b>d</b>	KTA 3201.1	0.007	Härtung: 890 - 900 °C / 6.83 h / WQ Anlassen: 640 - 650 °C / 17.25 h / Luft Spannungsarmglühung*
<b>Schweissnaht d-d</b> <b>S3 NiMo 1</b>	<b>e</b>	KTA 3201.1	0.007	*Spannungsarmglühung: 540 - 555 °C / 59 h / 465 °C / 590 - 610 °C / 21 h / 465 °C / 590 - 605 °C / 11.25 h / Luft
<b>20 MnMoNi 5 5</b> ≡ SA 508 Class 3	<b>f</b>	KTA 3201.1	0.015	Härtung: 900°C / 9 h / WQ Anlassen: 650 °C / 34 h / Luft / 660 °C / 14 h / Luft Spannungsarmglühung: 550°C / 46.5 h / 600 °C / 8 h / Luft
<b>WEZ von d</b>	<b>g</b>	KTA 3201.1	0.007	Spannungsarmglühung: 540 - 555 °C / 59 h / 465 °C / 590 - 610 °C / 21 h / 465 °C / 590 - 605 °C / 11.25 h / Luft
<b>WEZ von f</b>	<b>h</b>	KTA 3201.1	0.015	Spannungsarmglühung: 550°C / 46.5 h / 600 °C / 8 h / Luft
<b>Schweissnaht f-f</b> <b>S3 NiMo 1/OP 41 TT</b>	<b>i</b>	KTA 3201.1	0.005	Spannungsarmglühung: 550°C / 46.5 h / 600 °C / 8 h / Luft

WQ: abgeschreckt in Wasser OK: abgekühlt im Ofen

**Tabelle 1:** Untersuchte ferritische RDB-Werkstoffe.

Die chemische Zusammensetzung, Mikrostruktur und mechanischen Eigenschaften der untersuchten Stähle erfüllen die Anforderungen der entsprechenden kerntechnischen Regelwerke und Normen (KTA, ASME-BPV) für die druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von LWR [1]. Im wesentlichen unterscheiden sich die untersuchten Stähle in ihren Aluminium- und Schwe-



felgehalten bzw. in ihrer DSA-Anfälligkeit und ihrem Gehalt an MnS-Einschlüssen, die das Risskorrosionsverhalten massgeblich beeinflussen können [1, 3, 5]. Die WEZ weisen zudem deutlich erhöhte Festigkeitswerte auf.

Werkstoff		C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	V	Al	Cu
20 MnMoNi 5 5	a	0.21	0.25	1.26	0.004	0.004	0.15	0.5	0.77	0.008	0.013	0.06
SA 508 Cl. 2	b	0.21	0.27	0.69	0.005	0.004	0.38	0.63	0.78	0.006	0.015	0.16
SA 533 B Cl. 1	c	0.25	0.24	1.42	0.006	0.018	0.12	0.54	0.62	0.007	0.03	0.15
22 NiMoCr 3 7	d	0.215	0.20	0.91	0.008	0.007	0.42	0.53	0.88	0.007	0.018	0.04
Schweissnaht	e	0.054	0.17	1.19	0.013	0.007	0.04	0.55	0.94	0.006	0.0053	0.06
20 MnMoNi 5 5	f	0.26	0.32	1.44	0.016	0.015	0.15	0.61	0.63	0.02	0.029	0.17
WEZ von d	g	0.215	0.20	0.91	0.008	0.007	0.42	0.53	0.88	0.007	0.018	0.04
WEZ von f	h	0.26	0.32	1.44	0.016	0.015	0.15	0.61	0.63	0.02	0.029	0.17
Schweissnaht	i	0.07	0.13	1.15	0.014	0.005	0.10	0.49	1.04	0.01	0.011	0.05

**Tabelle 2:** Chemische Zusammensetzung der RDB-Stähle (in Gew.%).

Werkstoff		Raumtemperatur				288 °C
		R <sub>P0.2</sub> [MPa]	R <sub>m</sub> [MPa]	A <sub>5</sub> [%]	Z [%]	R <sub>P0.2</sub> [MPa]
20 MnMoNi 5 5	a	485	648	19.3	72.1	418
SA 508 Cl. 2	b	448	611	17.9	71.0	396
SA 533 B Cl. 1	c	456	605	23.4	59.9	412
22 NiMoCr 3 7	d	467	600	17.3	71.9	400
Schweissnaht	e	492	592	17.4	73.3	430
20 MnMoNi 5 5	f	508	664	20	61	439
WEZ von d	g	-	-	-	-	640*
WEZ von f	h	880	910	-	-	-
Schweissgut	i	530	610	-	-	-

**Tabelle 3:** Mechanische Eigenschaften (Zugversuch DIN 50145, B5X50 Proben). Mittelwerte von Zugproben in T- und L-Richtung und ¼ T bis ¾ T-Lage. (R<sub>P0.2</sub>: Streckgrenze, R<sub>m</sub>: Zugfestigkeit, A<sub>5</sub>: Bruchdehnung, Z: Einschnürung, \*: mit instrumentierter Härtemessung in der Mitte der WEZ).

#### Nickel-Basislegierungen und Mischnähte:

Die chemischen Zusammensetzungen der eingesetzten Nickelbasislegierungen und Mischnähte sind in Tabelle 4 zusammengestellt. Für den ersten Test des ICG-EAC-Round Robins (Phase 2) kommt die Nickelbasislegierung Inconel-600 mit einem C-Gehalt von 0.045 Gew.% und einer mittleren Austenitkorngrösse von ca. 70 µm (ASTM 4.5) zum Einsatz. Die an Luft erschmolzene Legierung wurde bei 1010 °C für etwa 1 bis 2 h wärmebehandelt („Mill Annealed“). Anschliessend wurde durch Kreuzwalzen eine Kaltverformung von 30 % (Dickenreduktion von jeweils 15 % pro Walzrichtung) aufgebracht. Durch die Kaltverformung stieg dabei die Streckgrenze des Materials von 257 auf 863 MPa an. Die Proben für den Ringversuch wurden so gefertigt, dass der Rissmund der Proben parallel zur Dickenrichtung lag. Im späteren Verlauf des Ringversuchs wird voraussichtlich eine in Japan gefertigte Inconel-182-Schweissverbindung zwischen zwei Inconel-600-Platten verwendet werden.

Zum Studium des Korrosionsrisswachstumsverhalten im Übergangsbereich vom Inconel-182-Schweissgut zum RDB-Grundwerkstoff SA 508 Cl. 3 kommt eine von Hitachi gefertigte, simulierte Mischnaht zum Einsatz (Figur 3). Hierbei wurde eine U-förmige Nut in der dicken RDB-Stahl-Platte mit Inconel-182 mittels Schutzgas-Metalllichtbogen-Handschiessung gefüllt und anschliessend bei 625 °C für 24.5 h spannungsarmgeglüht. Nach der Spannungsarmglühung konnten mittels XRD keine nennenswerten Schweisseeigenstressungen festgestellt werden und im Schweissgut wurde eine Zugfestigkeit von 627 MPa gemessen.

Werkstoff	C	Ni	Cr	Fe	P	S	Mn	Mo	Si	Ti	Nb	Al	N	Co	Cu
Inconel-600	0.045	75.9	15.58	7.73	0.008	1E-4	0.25	0.02	0.18	0.25	0.01	0.12	0.005	0.03	0.01
Inconel-182	0.04	70.8	14.26	9.7	0.002	0.003	2.46	-	0.24	0.05	1.87	-	-	-	0.01
SA 508 Cl. 3	0.19	0.78	0.15	Bal.	0.003	0.003	1.45	0.48	0.20	-	-	-	-	-	-

**Tabelle 4:** Chemische Zusammensetzung (in Gew.%) der untersuchten Inconel-600 Legierung und der simulierten Mischnaht Inconel-182/SA 508 Cl. 3.



**Figur 3:** Simulierte Inconel-182/SA 508 Cl. 3-Mischnaht zum Studium des Korrosionsrisswachstumsverhalten im Übergangsbereich zwischen Inconel-182-Schweissgut und unbeeinflusstem RDB-Grundwerkstoff.

### 2.1.2 Versuchsdurchführung

Die Versuchsdurchführung und –auswertung sowie der Messaufbau sind im Rahmen zweier PSI-Berichte [1, 25] detailliert beschrieben.

Das Risskorrosionsverhalten der verschiedenen Stähle wird in Versuchen unter konstanter Last mit oder ohne periodischer Teillastung (SprK) und in Experimenten mit langsam monoton ansteigender oder niederzyklischer Last (DRK, SwRK) in modernen Heisswasserkreisläufen unter simulierten SWR/NWC- oder HWC-Bedingungen in sauerstoff- oder wasserstoffhaltigem Heisswasser bei einer Temperatur von 150 bis 288 °C experimentell untersucht. Belastungsbedingungen und Wasserchemie (Sauerstoff/Wasserstoffverhältnis, Sulfat- und Chloridgehalt) werden hierbei gezielt variiert. Die Untersuchungen erfolgen mit 25 mm dicken bruchmechanischen 1T-C(T) Kompaktzugproben, die hauptsächlich in T-L- oder L-T-Richtung (entsprechend ASTM E 399) gefertigt werden. Vor dem Versuchsbeginn werden die Proben bei Raumtemperatur in Laborluft mit einem Schwingriss definierter Länge versehen. Alternativ kommen für WEZ-Proben auch Kompaktzugproben mit Rundkerben anstelle des Schwingrisses zum Einsatz.

Die Heisswasserkreisläufe (Figur 4) mit Autoklaven mit integrierten elektromechanischen Zugmaschinen erlaubten es, die im Betrieb auftretenden mechanischen, thermischen und wasserchemischen Bedingungen realitätsnah zu simulieren. Das Autoklavenvolumen von 10 Liter wird 3 bis 4-mal pro Stunde ausgetauscht. Dies ist zur Aufrechterhaltung konstanter wasser- und elektrochemischer Bedingungen ausreichend. Im Bereich der Probe beträgt die Strömungsgeschwindigkeit einige mm/s. Sauerstoff- und Wasserstoffgehalt, Leitfähigkeit, Durchfluss, Druck und Temperatur werden im Vorlauf- und Rücklauf des Niederdruck-/temperaturkreislaufs kontinuierlich gemessen. Zusätzlich wird im Hochdruck-/temperaturbereich Last, Temperatur, Druck, Korrosions- und Redox-Potential erfasst.

Die Regelung des Sauerstoff- und Wasserstoffgehaltes und der Leitfähigkeit im Vorlaufwasser erfolgt durch Einblasen von reinem Stickstoff, Sauerstoff und Wasserstoff (siehe Kap. 2.2.1) bzw. durch die Zudosierung von 0.02 molarer wässriger  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ - oder  $\text{NaCl}$ -Lösung zum hochreinen Heisswasser ( $< 0.06 \mu\text{S}/\text{cm}$ ). Das Korrosionspotential wird durch die Konzentration an gelöstem Sauerstoff bzw. das Sauerstoff/Wasserstoffverhältnis bestimmt. Die Messung des Korrosionspotentials der Proben und des Redox-Potentials der Umgebung (Pt-Elektrode) erfolgt kontinuierlich mit einer externen Ag/AgCl- oder einer  $\text{Cu}/\text{Cu}_2\text{O}/\text{ZrO}_2$ -Referenzelektrode mit einem digitalen Multimeter und speziellen Potentialvorverstärkern mit sehr hoher Eingangsimpedanz ( $> 10^{14} \Omega$ ).

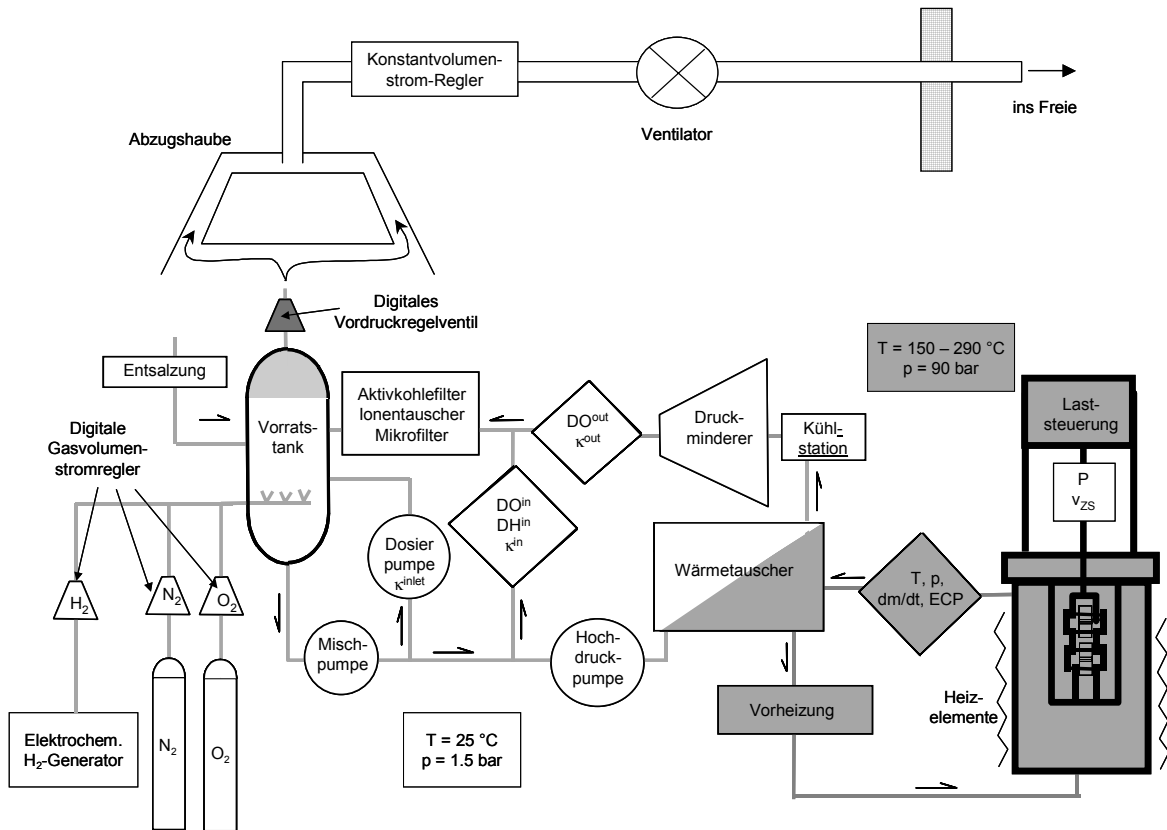
Eine kontinuierliche Messung des Risswachstums erfolgt während des Versuches mit der Gleichstrompotentialsonde (Auflösungsgrenze von 2 bis 5  $\mu\text{m}$ ). Nach dem Versuch wird das Risswachstum fraktographisch mit dem Licht- und Rasterelektronenmikroskop ausgemessen und die kontinuierlichen Messungen mit Hilfe der fraktographischen Ergebnisse korrigiert. Bei gleichmäßigem Risswachstum über die gesamte Probenbreite unterscheiden sich die Ergebnisse der Gleichstrompotentialsonde und der Fraktographie um weniger als 5 %.

## 2.2 UMBAU DER HEISSWASSERKREISLÄUFE FÜR WASSERSTOFFCHEMIE-FAHRWEISE

### 2.2.1 Gassteuerung und Analytik

Bisher wurde der Sauerstoffgehalt durch alternierendes Einblasen von reinem Sauerstoff und Stickstoff über einen PC und Magnetventile geregelt. Da diese Technik zur Kontrolle eines bestimmten Wasserstoff/Sauerstoff-Konzentrationsverhältnisses im Vorlaufwasser ungeeignet ist, wurde die ganze Steuerung für die Gaszudosierung grundlegend verändert. Figur 4 zeigt ein vereinfachtes Schema der verwendeten Heisswasserkreisläufe und der eingesetzten neuen Gassteuerung. Die Konzentration an im Vorlaufwasser gelöstem Sauerstoff und Wasserstoff wird durch Einblasen von hochreinem Sauerstoff, Wasserstoff und Stickstoff in den Vorratstank und Kontrolle des Partialdrucks der einzelnen Gase über der Wassersäule geregelt. Der im Wasser gelöste Gasgehalt ist entsprechend dem Henry-Gesetz proportional zum Partialdruck des jeweiligen Gases im Gasvolumen über der Wassersäule, welcher seinerseits jeweils proportional zu dessen Stoffmengenanteil  $x_i$  ist. Die Partialdrücke werden über hochpräzise, digitale Gasdurchflussregler für Wasserstoff, Stickstoff und Sauerstoff und über ein hochpräzises, digitales Vordruckregelventil gesteuert. Über den Gesamtdruck und den Gasdurchfluss der einzelnen Gase lassen sich hiermit über einen sehr weiten Bereich verschiedene Wasserstoff/Sauerstoff-Konzentrationsverhältnisse im Vorlauf sehr genau einstellen.

Durch Korrosionsprozesse wird im heissen Bereich des Kreislaufes Sauerstoff und Wasserstoff verbraucht. Der Sauerstoff und Wasserstoff können zudem auf dem Oxidfilm der Rohrleitungen/Autoklaven und auf der Platin-Redox-Elektrode zu Wasser rekombinieren, so dass im Rücklauf der Sauerstoff und Wasserstoff jeweils in tieferen Konzentrationen vorliegt als im Vorlauf. Der Sauerstoffgehalt wird deshalb kontinuierlich im Vor- und Rücklauf mit polarographischen Sensoren von Orbisphere gemessen. Die Messung des Wasserstoffgehalts erfolgt abwechslungsweise im Vorlauf- und Rücklauf über einen Wasserstoffsensoren (thermische Leitfähigkeitsmessung) von Orbisphere. Zusätzlich wird das freie Korrosionspotential ECP der Proben mit einer  $\text{Cu}/\text{Cu}_2\text{O}/\text{Zirkonoxid-Membran}$ - oder einer externen 0.01 M  $\text{KCl}/\text{Ag}/\text{AgCl}$ -Referenzelektrode und das Redox-Potential der Umgebung im Autoklaven mit einer Platin-Elektrode gemessen.



**Figur 4:** Vereinfachtes Schema der Heisswasserkreisläufen mit neuer Gasteuerung und Sicherheitsinstallationen.

### 2.2.2 Sicherheitsinstallationen

In den Versuchen mit HWC-Fahrweise kommen explosive Sauerstoff/Wasserstoff-Mischungen zum Einsatz. Zwar sind die Gasmengen relativ gering, eine lokale Anreicherung während den Langzeitversuchen kann aber nicht vollständig ausgeschlossen werden. Über den Vorrattanks der Kreisläufe wurde deshalb jeweils eine Abzugshaube mit Konstant-Volumenregler von 160 m<sup>3</sup>/h installiert (Figur 4). Die Abluft wird über eine gemeinsame Rohrleitung und einen Rohrventilator ins Freie abgeführt. Aus Sicherheitsgründen wird der Wasserstoff kontinuierlich durch elektrolytische Dissoziation von Wasser erzeugt. Im Falle eines Druckabfalls infolge eines Lecks stellen die Wasserstoffgeneratoren ihren Betrieb selbständig ein. An der Decke des Versuchsraums befindet sich zudem ein Wasserstoffsensoren, der an das Gasalarmsystem des PSI angeschlossen ist.

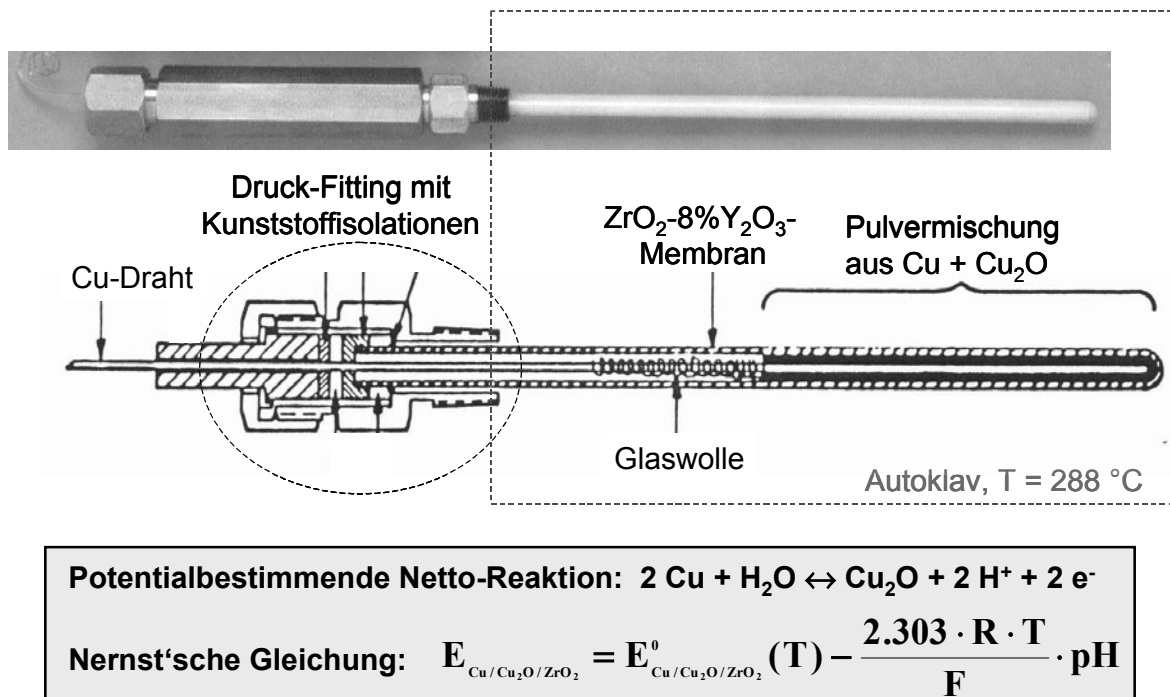
### 2.2.3 Vorversuche in Mini-Heisswasserkreislauf

Während der Berichtsperiode wurde aus alten Komponenten eines abgeschlossenen Wasserchemieprojektes ein zu den Risskorrosionskreisläufen analoger, aber kompakterer Heisswasserkreislauf aufgebaut und in Betrieb genommen, damit in der Zukunft zusätzliche Risskorrosionsexperimente durchgeführt werden können. Die neue Gasteuerung und verschiedene Referenzelektroden wurden hinsichtlich ihrer Eignung für die HWC-Fahrweise in diesem neuen Heisswasserkreislauf im Rahmen von Vorversuchen gezielt ausgetestet.

Die Vorversuche mit der neuen Gasteuerung im Mini-Heisswasserkreislauf mit einem 1 Liter Autoklaven ergaben, dass sich mit der verwendeten Technik sowohl der Wasserstoff- und Sauerstoffgehalt sowie das Wasserstoff/Sauerstoff-Konzentrationsverhältnis über einen weiten Bereich im Vorlauf sehr genau und reproduzierbar kontrollieren lassen. Zudem wurde bei einer hohen Austauschrate des Autoklavenvolumens (15/Stunde) und einem Vorlaufsauerstoffgehalt von 200 ppb selbst bei massiven Wasserstoffüberschuss (molares H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>-Verhältnis von 9) immer noch

eine beträchtliche Menge von 140 ppb Sauerstoff im Rücklauf beobachtet, was als sehr gutes Qualitätsmerkmal für den Heisswasserkreislauf betrachtet werden kann.

Die bisher zur ECP-Messung verwendete externe 0.01 M KCl/Ag/AgCl-Referenzelektrode [26, 27] hat sich bisher in wasserstofffreiem, sauerstoffhaltigem Heisswasser bewährt. Die Elektrode führt zu keiner messbaren Kontamination des Heisswassers mit Chlorid und weist einen akzeptablen Drift von 10 bis 30 mV in 1000 Stunden bei 288 °C auf. Erste Voruntersuchungen in wasserstoffhaltigem Heisswasser haben aber gezeigt, dass sich das Potential dieser Referenzelektrode mit zunehmender Wasserstoffkonzentration verändert und das verwendete Design deshalb für die HWC-Fahrweise ungeeignet erscheint. Aus diesem Grund wurden verschiedene, andere Referenzelektroden geprüft. Als beste Elektroden haben sich Metall/Metalloxid-Referenzelektroden mit ZrO<sub>2</sub>-Membran [28] herausgestellt (Figur 5). Diese Elektroden zeigen eine exzellente Langzeitstabilität, Reproduzierbarkeit und führen zu keinerlei Kontamination des Heisswassers mit Chlorid.



**Figur 5:** Cu/Cu<sub>2</sub>O/ZrO<sub>2</sub>-Referenzelektroden zur ECP- und pH-Messung in Heisswasser [28].

### 2.3 EINFLUSS VON WASSERCHEMIE-TRANSIENTEN UNTER SWR/NWC-BEDINGUNGEN

Das Risswachstumsverhalten während und nach einer Wasserchemietransiente ist von praktischer Bedeutung, da der Reaktorbetrieb unvermeidbar periodisch, kurzzeitige Variationen der Wasserchemie beinhaltet. Leitfähigkeits- und Sauerstoff-/Korrosionspotential-Transienten treten z. B. während des Anfahrens und gelegentlich während des stationären Leistungsbetriebs (z. B. durch Einbrüche von Ionentauscherharzen oder durch Leckagen im Bereich des Kondensators) auf. Die Häufigkeit, das Ausmass und die Zeitdauer (< 1 – 2 Tage) von solchen Transienten sind stark begrenzt.

Sauerstoff-/Korrosionspotential-Transienten wurden insbesondere im Zusammenhang mit der HWC-Fahrweise an rostfreien Stählen detailliert untersucht [30, 31]. Untersuchungen zum Einfluss von Sulfat- oder Chlorid-Transienten auf das SpRK-Risswachstum in niedriglegierten Stählen unter SWR/NWC-Bedingungen fanden bisher im Konzentrationsbereich < 100 ppb nicht statt. Bei niedriglegierten Druckbehälter- und Rohrleitungsstählen sind zudem unter SWR-Bedingungen unter gewissen Umständen Langzeit- und Memory-Effekte nach Wasserchemietransienten denkbar [1, 11, 29 - 31].

Erste orientierende Experimente im Bereich der verschiedenen Action Levels der EPRI-SWR-Wasserchemierichtlinie [32] (Tabelle 5) sollten deshalb Aufschluss darüber geben, inwieweit die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurven 2 und 1 das SpRK-Risswachstum während und nach kurzzeitigen Sulfat- und Chlorid-Transienten abdecken, und ob ein eventuell beschleunigtes SpRK-Risswachstum nach einer Transiente wieder abklingt. Zu diesem Zweck wurde das SpRK-Risswachstumsverhalten von vier verschiedenen RDB-Stählen (b, c, d, f) mit unterschiedlichen S-Gehalten während und nach Sulfat- (65 bis 370 ppb Sulfat) und Chlorid-Transienten (10 – 50 ppb) unter simulierten SWR/NWC-Bedingungen (288 °C, 0.4 oder 8 ppm O<sub>2</sub>) in Versuchen unter konstanter Last oder mit periodischer Teilentlastung untersucht (Versuchsablauf siehe Figur 6). Im folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst [33].

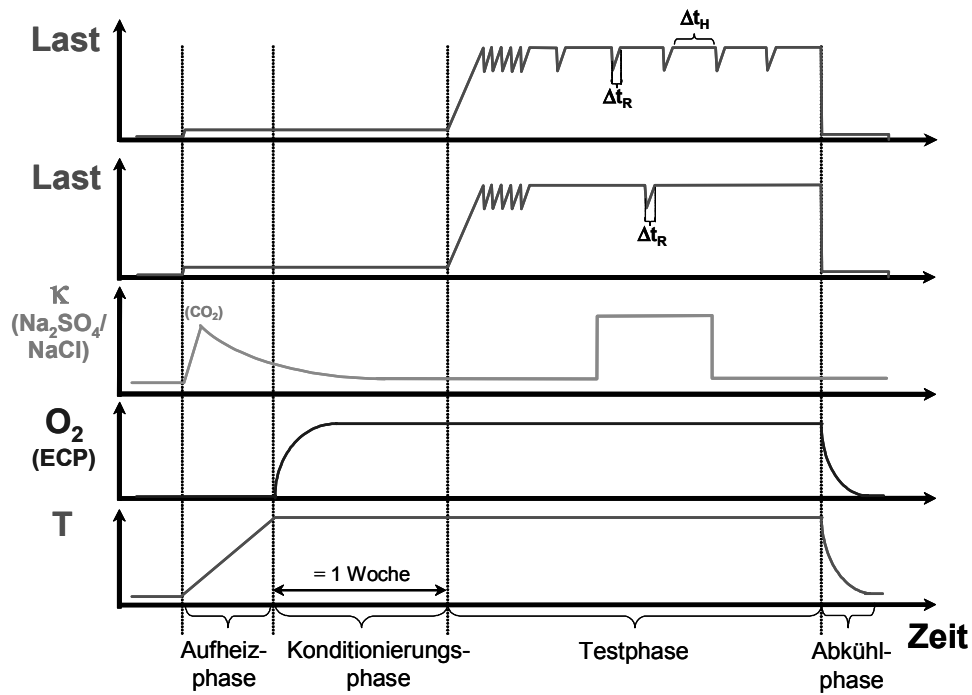
Parameter	Action Level 1	Action Level 2	Action Level 3
Leitfähigkeit [ $\mu\text{S}/\text{cm}$ ]	> 0.3	> 1.0	> 5.0
Sulfat [ppb]	> 5	> 20	> 100
Chlorid [ppb]	> 5	> 20	> 100
Zeit um die Parameter unterhalb des AL zu reduzieren	96 h	24 h (+ Zeit für Herunterfahren)	0 h
Massnahmen, falls die Werte immer noch über den AL liegen	Programm und Zeitplan für Gegenmassnahmen	Reguläres Herunterfahren der Anlage	Sofortiges Herunterfahren der Anlage

**Tabelle 5:** EPRI Wasserchemierichtlinie für das Reaktorwasser bei SWR/NWC Fahrweise [32].

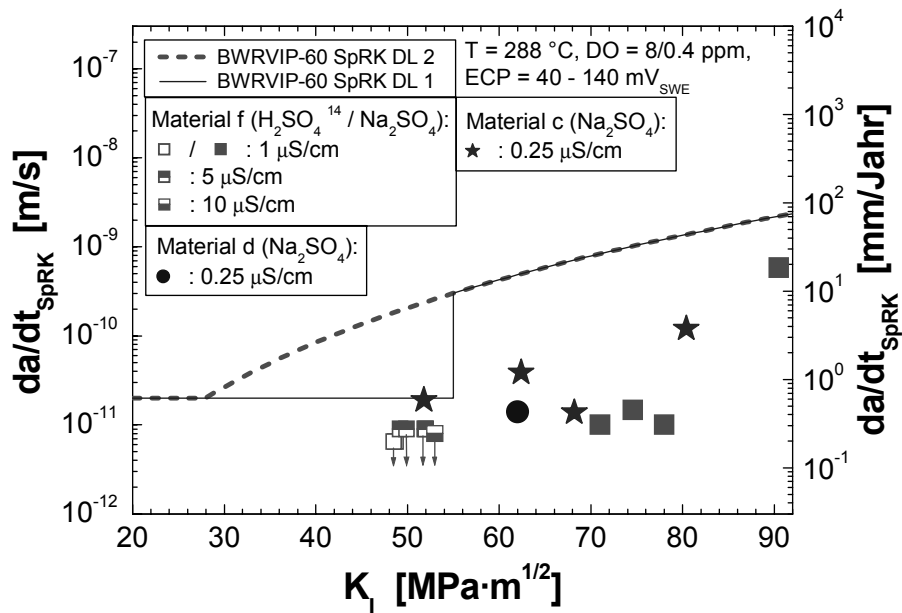
### 2.3.1 Einfluss von Sulfat-Transienten

In sauerstoffhaltigem Heisswasser (288 °C, 0.4 - 8 ppm O<sub>2</sub>, ECP = 0 bis +150 mV<sub>SWE</sub>) führten Sulfat-Konzentrationen weit oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 3 selbst bei erhöhten Sauerstoffgehalten von 8 ppm gegenüber höchstem Wasser bei keinem der untersuchten RDB-Werkstoffe zu einer Beschleunigung des Korrosionsrisswachstums in Versuchen mit konstanter oder zyklischer Last sowie mit periodischer Teilentlastung. Vor, während und nach den Sulfat-Transienten wurden jeweils die gleichen Risswachstumsraten beobachtet.

In Figur 7 sind die SpRK-Risswachstumsraten von Versuchen unter konstanter Last [1, 4, 33, 34] in sauerstoffhaltigem Heisswasser (0.4 oder 8 ppm O,  $\kappa = 0.25$  bis 10  $\mu\text{S}/\text{cm}$ , T = 288 °C) mit den RDB-Stählen b, c und f bei verschiedenen Sulfatkonzentrationen von 65 bis 1400 ppb (zudosiert als Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> oder H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) mit den BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurven verglichen. Im Fall rein statischer Belastung lagen die SpRK-Risswachstumsraten während und nach der Transiente ausnahmslos unterhalb der BWRVIP-60SpRK-Grenzkurve 1 für den transientenfreien, stationären SWR/NWC-Leistungsbetrieb. Des weiteren klang ein schnelles Korrosionsrisswachstum, das durch zyklische oder langsam ansteigende Last erzeugt wurde, selbst bei Sulfat-Konzentrationen weit oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 3 sehr rasch nach dem Übergang zu statischer Last ab und kam für K<sub>I</sub>-Werte bis zu ca. 60 MPa·m<sup>1/2</sup> innerhalb von 10 bis 100 h zum Stillstand. Ebenso wurde unter diesen Bedingungen in Versuchen mit periodischer Teilentlastung bei zunehmender Haltezeit ein Abklingen der SpRK-Risswachstumsrate beobachtet, das bei Haltezeiten oberhalb von 3 bis 10 h unter die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 fiel und bei Haltezeiten oberhalb von 10 bis 24 h im allgemeinen zum Stillstand kam. Die Gesamtheit dieser Ergebnisse bestätigen den konservativen Charakter der BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 und 1 für Sulfat-Transienten bzw. sulfat- und chloridfreies SWR/NWC-Reaktorwasser.

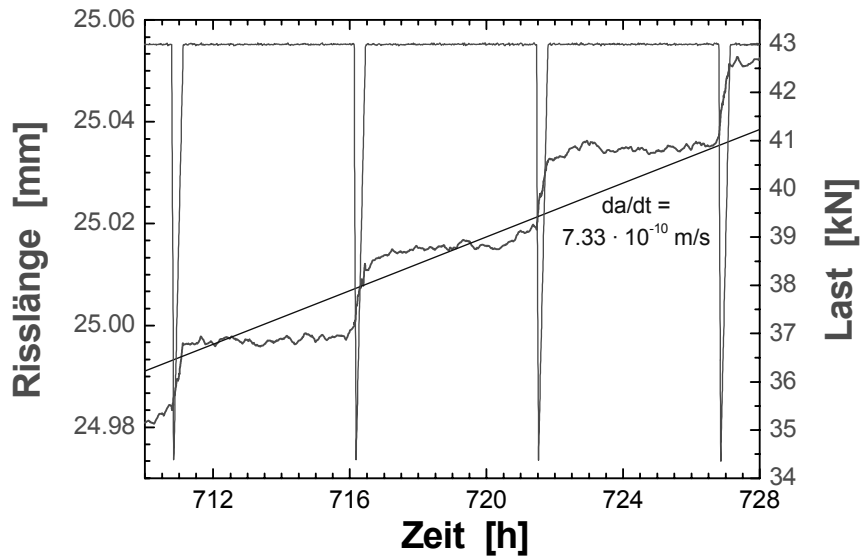


Figur 6: Schematischer Verlauf von Experimenten mit Sulfat-/Chloridtransiente.



Figur 7: Vergleich der SpRK-Risswachstumsraten während Sulfat-Transienten mit den BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurven. Die BWRVIP-60 Grenzkurve 2 deckt selbst Sulfat-Transienten oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 3 konservativ ab.

Figur 8 zeigt beispielhaft anhand eines Versuches mit periodischer Teillastung bei hoher Belastung das in chloridfreiem, sauerstoffhaltigem Heisswasser mit oder ohne Sulfat in RDB-Stählen beobachtete Risswachstumsverhalten. Der Riss wächst unter diesen Bedingungen im wesentlichen nur durch DRK während der Lastaufbringungsphase. Anschliessend klingt das SpRK-Risswachstum unter konstanter Last rasch auf sehr geringe Risswachstumsraten ab und kommt in der Teillastungsphase zum Stillstand.



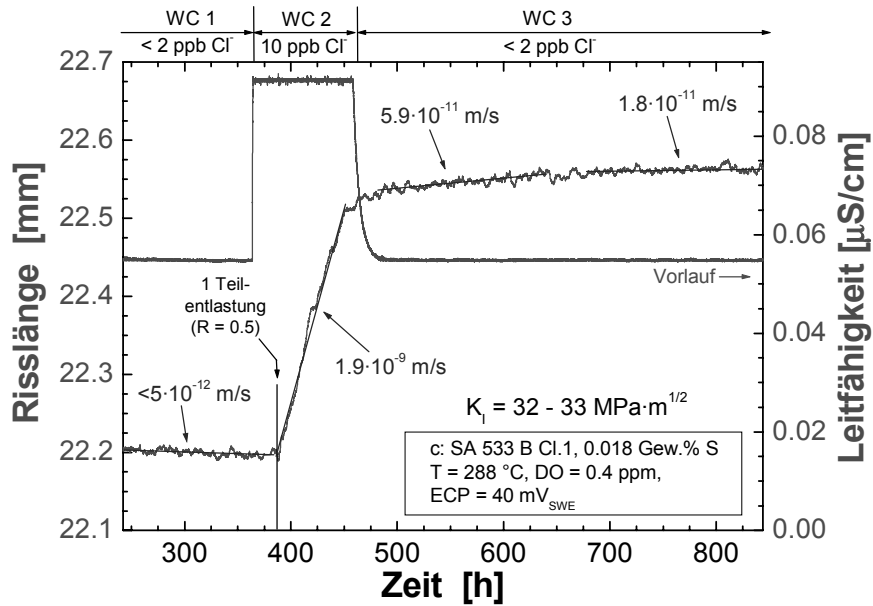
**Figur 8:** Verlauf des korrosionsgestützten Risswachstums im RDB-Stahl f innerhalb einzelner Teillastungszyklen während einer Sulfat-Transiente von 370 ppb. Der überwiegende Teil des Risswachstums tritt jeweils durch DRK während der Lastaufbringung auf.

Das während und nach Sulfat-Transienten beobachtete Risswachstumsverhalten könnte damit erklärt werden, dass unter den stark oxidierenden Umgebungsbedingungen schon vor der eigentlichen Sulfat-Transiente in hochreinem Heisswasser in den angerissenen Proben durch die Auflösung der vom Riss angeschnittenen MnS-Einschlüsse „High-Sulphur“-Wasserchemiebedingungen im Rissspitzenelektrolyt vorherrschten. Eine Zudosierung von Sulfat führt in diesem Sättigungsfall dann zu keiner Beschleunigung des EAC-Risswachstums. Vergleichbare DRK- und SwRK-Risswachstumsraten in RDB-Stählen mit stark unterschiedlichen S-Gehalten unter stark oxidierenden SWR-Bedingungen in hochreinem und mit Sulfat verunreinigtem Heisswasser in PSI-Untersuchungen [1, 8] unterstützten diese Hypothese. Aus diesen Untersuchungen darf aber keinesfalls abgeleitet werden, dass das Sulfat generell ungefährlich ist. So wurde z. B. ein starker Einfluss des Sulfats auf die Rissinitiierung an glatten rissfreien Oberflächen oder auf das Risswachstum unter weniger stark oxidierenden Bedingungen bei geringeren Korrosionspotentialen (z. B. SWR-Speisewasserleitungssystem, DWR, ...) beobachtet [1, 3, 6, 7].

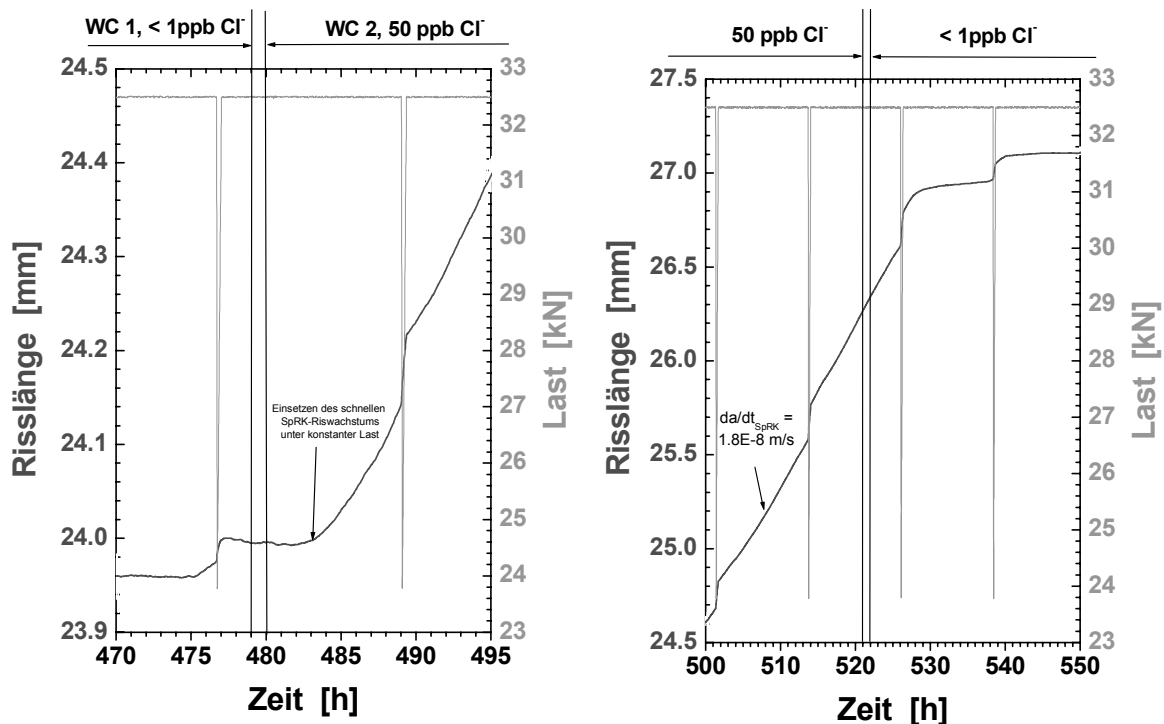
### 2.3.2 Einfluss von Chlorid-Transienten

Unter SWR/NWC-Bedingungen (288 °C, 0.4 bis 8 ppm O<sub>2</sub>, ECP = 0 bis +150 mV<sub>SWE</sub>) führte im untersuchten Spannungsintensitätsfaktorbereich K<sub>I</sub> von 32 bis 62 MPa·m<sup>1/2</sup> die Zugabe von 10 ppb (> EPRI Action Level Grenzwert 1) bis 50 ppb Chlorid (≥ EPRI Action Level Grenzwert 2) im Gegensatz zu Sulfat-Transienten in allen untersuchten RDB-Stählen z. T. schon nach einer sehr kurzen Inkubationsphase von wenigen Stunden zu einer Beschleunigung des SpRK-Risswachstums (Figuren 9 und 10) von mindestens einer Größenordnung und zu stationären SpRK-Risswachstumsraten oberhalb der BWRVIP-60 SpRK Grenzkurve 2 (Figur 11). Die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 für Wasserchemietransienten deckt deshalb Chlorid-Transienten oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 1 im Gegensatz zu Sulfat-Transienten nicht konservativ ab. Obwohl in den meisten Fällen das SpRK-Risswachstum nach der Rückkehr zu höchstem Wasser (< 1 ppb Chlorid) nach einer relativ kurzen Übergangszeit von wenigen 10 bis 100 Stunden nach der Transiente kontinuierlich abnahm und zum Stillstand kam, wurde nach schweren und langanhaltenden Chlorid-Transienten (≥ EPRI Action Level Grenzwert 2) über sehr lange Zeiträume von mindestens 1000 h schnelles und langanhaltendes SpRK-Risswachstum mit Risswachstumsraten deutlich oberhalb der BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 beobachtet (Figur 12). Chlorid-Transienten (≥ EPRI Action Level Grenzwert 1) im Reaktorbetrieb sowie deren Zeitdauer und Ausmass sind deshalb durch geeignete Massnahmen so weit als möglich zu vermeiden bzw. zu reduzieren.

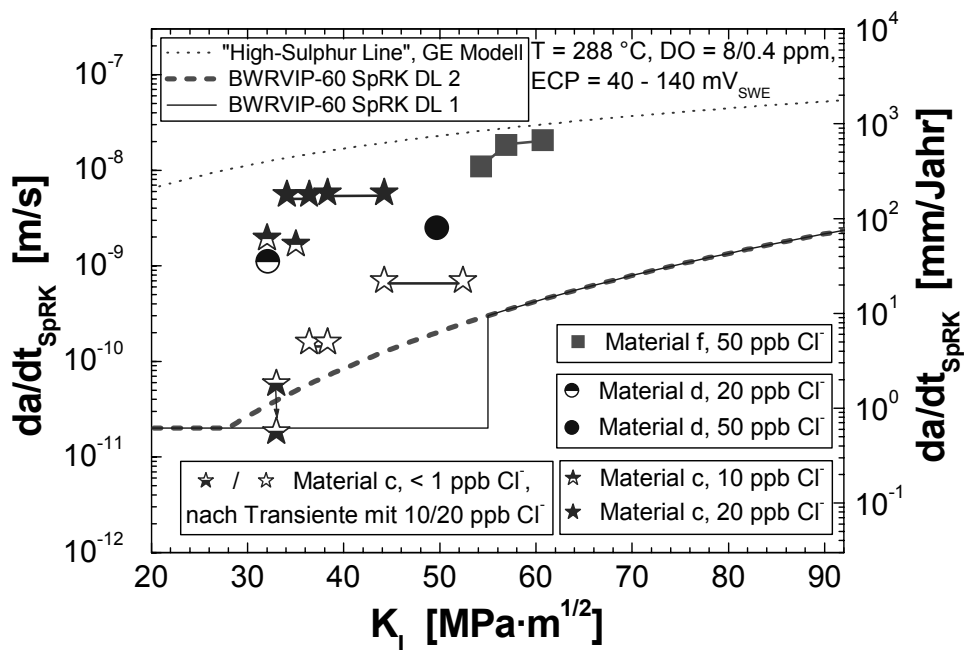




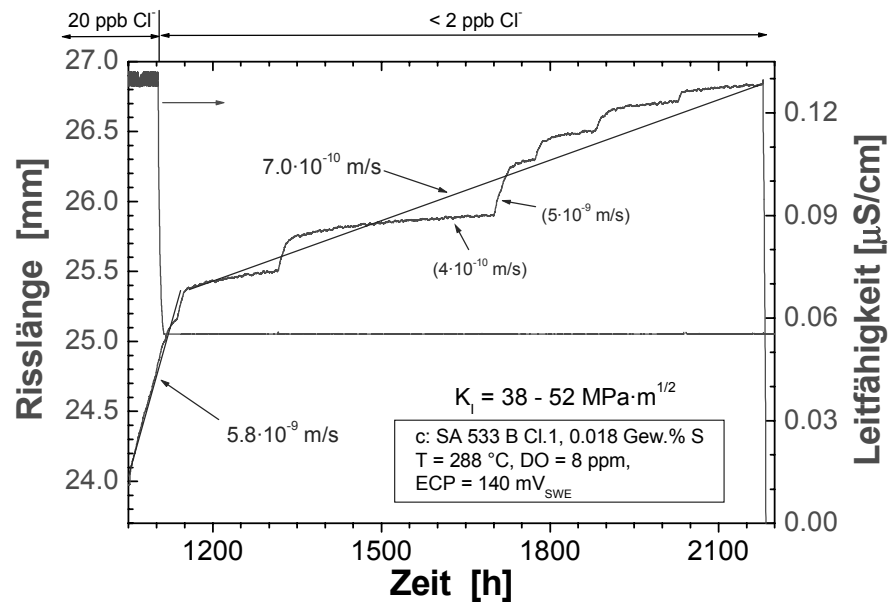
**Figur 9:** Verlauf des SpRK-Risswachstums im RDB-Stahl c in einem Versuch mit statischer Beanspruchung vor, während und nach einer Chlorid-Transiente von 10 ppb unter SWR/NWC-Bedingungen (ECP = +40 mV<sub>SWE</sub>, 0.4 ppm O<sub>2</sub>, 288 °C).



**Figur 10:** Verlauf des korrosionsgestützten Risswachstums im RDB-Stahl f in einem Versuch mit periodischer Teilentlastung zu Beginn (links) und am Ende einer Chlorid-Transiente von 50 ppb unter SWR/NWC-Bedingungen (ECP = +150 mV<sub>SWE</sub>, 8 ppm O<sub>2</sub>, 288 °C).



**Figur 11:** Vergleich der SpRK-Risswachstumsraten während und nach Chlorid-Transienten mit den BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurven. Die BWRVIP-60 Grenzkurve 2 und 1 decken das SpRK-Risswachstum während und nach Chlorid-Transienten oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 1 nicht konservativ ab.



**Figur 12:** Langanhaltendes SpRK-Risswachstum im RDB-Stahl c unter SWR/NWC-Bedingungen (ECP = +140 mV<sub>SWE</sub>, 8 ppm O<sub>2</sub>, 288 °C) nach einer schweren Chlorid-Transiente von 20 ppb mit einer Dauer von 300 h. (Die Form der Risswachstumskurve nach der Transiente ist auf wiederholtes lokales Pinning des Risswachstums und nachfolgendes Versagen der unebrochenen Ligamente zurückzuführen).

### Erklärung für den unterschiedlichen Einfluss von Sulfat und Chlorid:

Unter stark oxidierenden SWR/NWC-Bedingungen können schon Chlorid-Gehalte von 10 - 50 ppb zu einer Beschleunigung des SpRK-Risswachstums unter konstanter Last um mehr als zwei Grössenordnungen führen. Unter zyklischer oder langsam ansteigender Last führt Chlorid gegenüber hochreinem Heisswasser hingegen nur zu einer leichten Beschleunigung des SwRK- und DRK-Risswachstums mit einem Faktor von 2 bis maximal 5. Beim Sulfat wurde unter diesen Bedingungen in keinem Belastungsfall ein beschleunigender Effekt beobachtet, was primär auf die Auflösung der MnS-Einschlüsse im Risskanal und das Vorliegen von „High-Sulphur“-Wasserchemiebedingungen im Rissspitzenelektrolyt zurückgeführt wurde.

Der stärkere Einfluss von Chlorid gegenüber Sulfat, insbesondere sein dominanter Effekt unter statischer Belastung, kann möglicherweise damit erklärt werden, dass Chlorid gegenüber Sulfat zu einer stärkeren Ansäuerung des Rissspitzenelektrolyts führt. Sulfat neigt bei hohen Temperaturen zu einer Hydrolysereaktion, welche den pH leicht erhöht. Eine Absenkung des pH führt dagegen zu einer schnelleren Metallauflösung nach dem Bruch der schützenden Oxidschicht und verzögert danach die erneute Schutzschichtbildung (Repassivierung), so dass daraus gemäss dem „Film Rupture/Anodic Dissolution“-Mechanismus [3] ein grösserer korrosionsgestützter Rissfortschritt durch anodische Auflösung resultiert. Ist der Rissfortschritt bis zur vollständigen Repassivierung infolge ausreichend hoher Chlorid-Anreicherung genügend gross, kann der Rissfortschritt in eine noch weniger stark verfestigte Zone selbst zu einem für einen erneuten Bruch der schützenden Oxidfilmschicht ausreichend starken Anstieg der Rissspitzendehnung führen. Das SpRK-Risswachstum kann sich deshalb hier unter konstanter Last autokatalytisch aufrechterhalten. In hochreinem oder sulfathaltigem Wasser reicht der Rissfortschritt hierzu nicht aus und es tritt nur langanhaltendes Korrosionsrisswachstum unter zyklischer oder langsam ansteigender Last auf, wo ein erneutes Aufbrechen der Schutzschicht durch den Lastanstieg gewährleistet wird.

Des weitern wird Chlorid in den Oxidfilm eingebaut und verändert dessen mechanische und elektrochemische Eigenschaften nachhaltig, was sich in einer geringeren Bruchdehnung oder reduzierten Schutzwirkung äussern und im schlimmsten Fall zum lokalen, elektrochemischen „Breakdown“ der Schutzschicht führen kann.

## **2.4 ICG-EAC INCONEL-600 / INCONEL-182-ROUND ROBIN**

Innerhalb der ICG-EAC-Gruppe wurde 2002 ein Ringversuchsprogramm zur Risskorrosion in Nickelbasislegierungen unter SWR und DWR-Bedingungen gestartet, dass durch das Forschungs- und Entwicklungszentrum von General Electric (GE CRD) koordiniert wird und an dem sich insgesamt 24 Teilnehmer aus Amerika (4), Europa (9) und Asien (11) beteiligen. Das Ringversuchsprogramm hat folgende drei Hauptzielsetzungen:

- Etablierung einer breit abgestützten ICG-EAC-Versuchspraxis („Testing Guidelines“) für Korrosionsrisswachstumsexperimente unter SWR und DWR-Bedingungen.
- Identifikation und Eliminierung von möglichen Fehlerquellen und Ursachen für die grosse Streubreite von Risswachstumsdaten verbunden mit der Optimierung von Versuchseinrichtungen und Testprozeduren.
- Erzeugung von belastbaren SpRK-Risswachstumsdaten in Inconel-182 Schweissgut unter SWR und DWR-Bedingungen.

Das Ringversuchsprogramm teilt sich in Untersuchungen unter SWR- und DWR-Bedingungen auf und besteht aus fünf Phasen (Tabelle 6). In der ersten Phase musste von jedem Teilnehmer eine detaillierte Dokumentation zu den Versuchseinrichtungen erstellt und ein entsprechender Fragenkatalog von GE CRD beantwortet werden. Diese Dokumentation und die unterschiedlichen Versuchsanlagen wurden im Rahmen des ICG-EAC 2003 Meetings diskutiert und Empfehlungen für die Modifikation von Versuchseinrichtungen ausgearbeitet, so dass in allen Labors möglichst vergleichbare Versuchsbedingungen erzielt werden können.

Phase	SWR 15 Teilnehmer		DWR 14 Teilnehmer		Zeitplan
	Material	Bedingungen	Material	Bedingungen	
Phase 1a	Dokumentation zu Versuchssystemen		Dokumentation zu Versuchssystemen		Dez. 02
Phase 1b	Diskussion und allfällige Modifikationen → vergleichbare Versuchsbedingungen		Diskussion und allfällige Modifikationen → vergleichbare Versuchsbedingungen		April 03
Phase 2a	In-600 CW	2 ppm O <sub>2</sub>	In-600 CW	B/Li, 325 °C, 30 cc/kg H <sub>2</sub>	April 04
Phase 2b	In-600 CW	2ppm O <sub>2</sub> + 30 ppb SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	In-600 CW	B/Li, 288 °C, 30 cc/kg H <sub>2</sub>	April 04
Phase 3a	Vergleich der SpRK-Ergebnisse		Vergleich der SpRK-Ergebnisse		April 04
Phase 3b	In-600 CW	Event. Testwiederholung	In-600 CW	Event. Testwiederholung	2004
Phase 4a	In-182	Festlegung nach Phase 3	In-182	Festlegung nach Phase 3	2004?
Phase 4a	In-182	Festlegung nach Phase 4a	In-182	Festlegung nach Phase 4a	2005
Phase 5	Abschlussbericht + "Testing Guidelines"				2005

**Tabelle 6:** Programm und Planung für den ICG-EAC-Ringversuch.

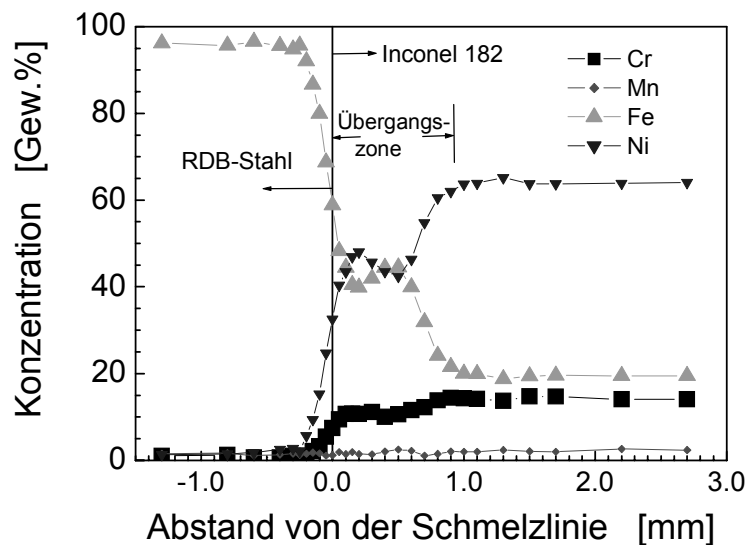
In der zweiten Phase des Ringversuches wird zur Zeit das SpRK-Risswachstumsverhalten der Nickelbasislegierung Inconel-600 unter SWR- (2 ppm O<sub>2</sub>, 288 °C, hochreines Wasser und 30 ppb Sulfat) und DWR-Bedingungen (sauerstofffrei, 30 cc/kg H<sub>2</sub>, 325 und 288 °C) untersucht. Durch Kreuzwalzen wurde im Ausgangsmaterial eine Kaltverformung von 30 % aufgebracht. Damit innerhalb vernünftiger Zeitdauer entlang der gesamten Rissfront ein vollständiger Übergang vom transkristallinen Schwingriss zu einem interkristallinen SpRK-Riss möglichst gleichmässig erfolgt, wird für diese Versuche eine komplexe Blockbelastungssequenz verwendet: Zu Beginn wird ein aktiv wachsender Korrosionsriss durch zyklische Belastung erzeugt, wobei das Lastverhältnis bei konstanter Oberlast schrittweise von 0.3 bis auf 0.7 erhöht wird. Anschliessend wird bei einem Lastverhältnis von 0.7 die Belastungsfrequenz schrittweise von  $\geq 1$  Hz auf  $10^{-3}$  Hz gesenkt und schliesslich zusätzlich eine Haltezeit von 9000 s bei konstanter Oberlast (periodische Teillastung) eingefügt, gefolgt von einer langen Phase mit rein statischer Belastung oder konstantem K<sub>I</sub>-Wert. Der Übergang vom trans- zum interkristallinen Risswachstum erfolgt dabei typischerweise während der Phase mit niederfrequenter zyklischer Belastung oder mit periodischer Teillastung.

Die Phase 2 soll primär aufzeigen, bis zu welchem Grad vergleichbare Versuchsbedingungen und Testergebnisse in den einzelnen Labors erzeugt werden können, und mithelfen allfällige Fehlerquellen und Ursachen für die grosse Streubreite der Ergebnisse zu identifizieren. Aus diesem Grund wurde für diese Phase ein Werkstoff und Materialzustand gewählt, der sowohl unter SWR- wie auch DWR-Bedingungen ein relativ gut bekanntes Risswachstumsverhalten aufweist und eine ausreichend hohe Risswachstumsanfälligkeit zeigt. Die Experimente der Phase 2 müssen bis spätestens April 2004 durchgeführt und ausgewertet sein. Je nach Ergebnissen müssen zumindest einzelne Partner in Phase 3 nach Modifikation der Versuchstechnik einen Test aus Phase 2 wiederholen.

Nach Beseitigung aller experimentellen Unsicherheiten/Probleme erfolgt anschliessend die Kernphase 4 des Versuchsprogramms bestehend aus zwei Experimenten mit Inconel-182-Schweissgut unter SWR- bzw. DWR-Bedingungen. Als Probenmaterial wird voraussichtlich eine in Japan hergestellte Inconel-182-Schweissverbindung zwischen zwei Inconel-600-Platten verwendet werden. Aufgrund der begrenzten Menge an verfügbarem Material werden für diese Untersuchungen kleinere, 12.5 mm dicke 0.5T C(T) Kompaktzugproben zum Einsatz gelangen.

## 2.5 INCONEL-182-RDB-MISCHNAHT

Im Rahmen einer Zusammenarbeit mit dem Fracture Research Institute (FRI) der Tohoku Universität in Sendai (Japan) wird das SpRK-Risswachstumsverhalten in der Übergangszone vom Inconel-182-Schweißgut entlang der Schmelzlinie und WEZ in den unbeeinflussten RDB-Stahl SA 508 Cl. 3 hinein unter simulierten SWR/NWC-Bedingungen experimentell untersucht. Neben Risskorrosionsexperimenten werden zur Zeit auch das Gefüge (Mikrostruktur, Profile der chemischen Zusammensetzung (Figur 13)) und die mechanischen Eigenschaften (Mikro- und Makrohärteverläufe, Eigenspannungen, ...) der Mischnaht metallographisch und metallurgisch eingehend charakterisiert.



**Figur 18:** Konzentrationsprofile wichtiger Legierungselemente im Übergangsbereich zwischen RDB-Stahl und Inconel-182-Schweißgut.

Im Übergangsbereich zwischen niedriglegiertem, ferritischem RDB-Stahl und hochlegiertem Nickelbasis-Schweißgut kann sich je nach Schweißparameter, Wärmebehandlung und chemischer Zusammensetzung ein sehr weiter Bereich verschiedener Mikrostrukturen ausbilden, der zudem von handgeschweisster Naht zu Naht sehr stark variieren kann. Der gesamte Übergangsbereich vom unbeeinflussten RDB-Grundwerkstoff zum Schweißgut kann sich dabei durchaus über 4 bis 6 mm erstrecken.

Ende November wurde am PSI ein SpRK-Risswachstumsexperiment unter simulierten SWR/NWC-Bedingungen mit einer komplexen Belastungsgeschichte und einer totalen Dauer von 3,5 Monaten abgeschlossen. Zur Zeit läuft die Auswertung dieses extrem anspruchsvollen Experiments, welches auch sehr detaillierte metallographische und fraktographische Nachuntersuchungen erfordert. Am FRI wurde anfangs Dezember ein analoges Experiment gestartet.

Die provisorischen Zwischenergebnisse der Messungen mit der Gleichstrompotentialsonde deuten darauf hin, dass ein anfänglich schnelles SpRK-Risswachstum unter konstanter Last im Inconel-182-Schweißgut selbst unter aggressiven Umgebungsbedingungen (8 ppm O<sub>2</sub>, 30 ppb Sulfat) in der Übergangszone oder spätestens in der WEZ des RDB zum Stillstand kommt und sich nicht weiter in den unbeeinflussten RDB-Grundwerkstoff fortsetzen kann.

## 2.6 PUBLIKATIONEN 2003

### Zeitschriftenartikel:

- **S. Ritter, H.P. Seifert:** „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy RPV-Steels under BWR Conditions”, Power Plant Chemistry, Vol. 5, No.1, 2003, pp. 17 - 29.

### Konferenzbeiträge mit PEER-Review:

- **S. Ritter, H.P. Seifert, S. Ritter, H.P. Seifert:** „Stress Corrosion Cracking Behaviour of Low-Alloy Reactor Pressure Vessel Steels and of a Weld Filler Material under Simulated BWR Environment”, NACE Corrosion 2003, CD-ROM, Paper No. 03664, NACE, San Diego, CA, USA, 16. – 20. März 2003.
- **H.P. Seifert, S. Ritter, H.P. Seifert, S. Ritter:** “Effect of Temperature and Loading Frequency on the SCC and Corrosion Fatigue Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- **H.P. Seifert, S. Ritter:** “New Observations About the SCC Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels Under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, Colorado, USA, 10. – 14. August 2003.
- **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Hickling:** „Environmentally-Assisted Cracking of Low-Alloy RPV and Piping Steels under LWR Conditions”, Invited Talk, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.

### Konferenzbeiträge ohne PEER-Review:

- **H.P. Seifert, S. Ritter:** “Evaluation and Assessment of the BWRVIP-60 SCC Crack Growth Curves for Low-Alloy Steels under BWR/NWC Conditions”, Minutes of the 2003 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L6, Ottawa, Kanada, 11. – 16. Mai 2003.
- **H.P. Seifert, S. Ritter:** „Preliminary PSI Results of the 1<sup>st</sup> ICG-EAC Round Robin Test on CW Alloy 600 (Phase 2) under BWR Conditions“, Minutes of the 2003 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Austenitic Alloys - Ni Round Robin Session, Paper AARR4, Ottawa, Kanada, 11. – 16. Mai 2003.
- **S. Ritter, H.P. Seifert:** „The Effect of Chloride and Sulphate Transients on the Environmentally-Assisted Cracking Behaviour of Low-Alloy RPV Steels under Simulated BWR Conditions”, EUROCORR 2003, CD-ROM, Budapest, Ungarn, 28. September – 2. Oktober 2003.
- **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Hickling:** „EAC of Low-Alloy RPV and Piping Steels under BWR Conditions - Summary Presentation of ongoing Work to ASME Sect. XI“, Presentation für die “ASME BPV Working Group on Flaw Evaluation”, San Diego, California, USA, 25. Februar 2003.
- **D. Kalkhof, H.P. Seifert, M. Niffenegger, S. Ritter:** „Massgebende Alterungsphänomene bei metallischen Werkstoffen“, Tagungsband SVA-Vertiefungskurs „Betriebsdauermanagement der Kernkraftwerke“, SVA, pp. 2.1-1 – 2.1-22, Fachhochschule Winterthur, 27. und 28. November 2003.

### Wissenschaftliche Berichte des PSI:

- **H.P. Seifert, S. Ritter, U. Ineichen, U. Tschanz, B. Gerodetti:** “Risskorrosion in druck-führenden Komponenten des Primärkreislaufes von SWR”, PSI Bericht Nr. 03-10, April 2003.

### 3. Nationale Zusammenarbeit

Auf nationaler Ebene findet die Zusammenarbeit und der Technologietransfer in erster Linie im unmittelbaren kerntechnischen Umfeld statt. Die Überwachungs- und Aufsichtsbehörde HSK und die Schweizer Kraftwerke wurden im Rahmen der HSK-PSI-Projektstatusgespräche/Halbjahres-sitzungen [35, 36] und anderer Veranstaltungen (KFES [37], SVA-Tagung [38]) regelmässig über den aktuellen Stand der Arbeiten informiert.

### 4. Internationale Zusammenarbeit

Als Mitglied der ICG-EAC-Gruppe stehen wir in engem Kontakt mit der internationalen Fachwelt. Die eigenen Forschungsbeiträge werden in diesem internationalen Gremium regelmässig vorge-stellt, diskutiert und mit anderen Projekten koordiniert [18, 19]. Das PSI beteiligt sich innerhalb dieser Gruppe zudem an einem grossen Ringversuch zum SpRK-Risswachstum in Inconel-182-Schweissgut, an dem 24 führende Institutionen aus Amerika, Europa und Asien teilnehmen.

Des weiteren besteht auf dem Gebiet der Risskorrosion der Mischnähte eine Zusammenarbeit mit dem Fracture Research Institute der Tohoku Universität aus Sendai/Japan. Bei der Herstellung neuer Cu/Cu<sub>2</sub>O/ZrO<sub>2</sub>-Referenzelektroden für die Korrosionspotentialmessung unter HWC-Bedingungen wird das PSI durch GE CRD unterstützt. Die Ergebnisse des PSI zur SwRK/SpRK unter SWR/NWC-Bedingungen wurden im Februar dieses Jahres der „ASME Section XI Working Group on Flaw Evaluation“ vorgestellt [39]. Dieser ASME BPV Regelwerks-Unterausschuss begutachtet Vorschläge für neue Ermüdungsrissswachstumskurven in ferritischen Stählen.

Innerhalb des Projektes „CASTOC“ [34] im 5. EU-Rahmenprogramm (2000 – 2003) (EURATOM, EU Nr. FIKS-2000-00048/BBW Nr.: 99.0715), das zu Beginn des Jahres 2004 mit dem Abschlussbericht abgeschlossen wird, besteht auf dem Gebiet der Risskorrosion ferritischer Druckbehälter- und Rohrleitungsstähle eine intensive Zusammenarbeit mit den Projektpartnern MPA Stuttgart, Framatome ANP (beide Deutschland), VTT (Finnland), CIEMAT (Spanien) und NRI (Tschechische Republik). Dieses Projekt hat im wesentlichen zu einer Bestätigung und breiteren Absicherung der PSI-Ergebnisse aus den Projekten SpRK und RIKORR-I geführt.

## 5. Bewertung 2003 und Ausblick 2004

### 5.1 BEWERTUNG 2003

Alle Zielsetzungen und Meilensteine für 2003 wurden erreicht. Trotz der umfangreichen Umbauarbeiten konnte das Versuchsprogramm dank einer guten Planung ohne wesentliche Ein-schränkungen oder Verzögerungen durchgeführt werden.

### 5.2 SCHLUSSFOLGERUNGEN

Durch den Abschluss der Umbauarbeiten besteht nun ab Beginn des Jahres 2004 die Möglichkeit Risskorrosionsexperimente auch unter simulierten HWC-Bedingungen bei unterschiedlichen Was-serstoff/Sauerstoff-Konzentrationsverhältnissen durchzuführen. Dies ist von grosser Bedeutung für die Schweizer SWR, da KKM seit kurzem die HWC/NMCA-Fahrweise einsetzt und KKL ein Wech-sel von der NWC- zur HWC- oder HWC/NMCA-Fahrweise ins Auge fasst.

Neben dem ICG-EAC-Ringversuch mit kaltverformtem Inconel-600 sowie einem Experiment mit einer Inconel-182/RDB-Stahl-Mischnaht wurde während der Berichtsperiode hauptsächlich der Einfluss von kurzzeitigen Chlorid-Transienten auf das SpRK-Risswachstum in ferritischen RDB-Stählen unter SWR/NWC-Bedingungen untersucht. Folgende bedeutende Folgerungen können aus diesen Versuchsergebnissen abgeleitet werden:

Unter SWR/NWC-Bedingungen ( $\geq 400$  ppb O<sub>2</sub>) führte im untersuchten Spannungsintensitäts-faktorbereich  $K_I$  von 32 bis 62 MPa·m<sup>1/2</sup> die Zugabe von 10 ppb ( $>$  EPRI Action Level Grenzwert 1) bis 50 ppb Chlorid ( $\geq$  EPRI Action Level Grenzwert 2) in allen RDB-Stählen z. T. schon nach einer sehr kurzen Inkubationsphase von wenigen Stunden zu einer Beschleunigung des SpRK-Riss-

wachstums von mindestens einer Grössenordnung und zu stationären SpRK-Risswachstumsraten oberhalb der BWRVIP-60 SpRK Grenzkurve 2. Die BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 für Wasserchemietransienten deckt deshalb Chlorid-Transienten oberhalb des EPRI Action Level Grenzwertes 1 im Gegensatz zu Sulfat-Transienten nicht konservativ ab. In mehreren Fällen wurde zudem nach der Rückkehr zu höchstreinem Wasser ( $< 1$  ppb Chlorid) nach schweren und langanhaltenden Chlorid-Transienten ( $\geq$  EPRI Action Level Grenzwert 2) über sehr lange Zeiträume von mindestens 1000 h schnelles und langanhaltendes SpRK-Risswachstum mit Risswachstumsraten deutlich oberhalb der BWRVIP-60 SpRK-Grenzkurve 2 beobachtet, was deutlich oberhalb der 100h Übergangsperiode nach BWRVIP-60 liegt.

Ausgehend von Anrissen können schwere Chlorid-Transienten unter ungünstigen Bedingungen zu einem erheblichen und technisch relevanten SpRK-Risswachstum führen. Chlorid-Transienten ( $\geq$  EPRI Action Level Grenzwert 1) im Reaktorbetrieb sowie deren Zeitdauer und Ausmass sind deshalb durch geeignete Massnahmen so weit als möglich zu vermeiden bzw. reduzieren.

### 5.3 AUSBLICK 2004

Für das Jahr 2004 sind folgende Arbeiten geplant [36]:

#### SWR/NWC-Bedingungen:

- Abschluss der Untersuchungen zum Einfluss von Chlorid-Transienten bei tieferen Chlorid-Konzentrationen im Bereich von 5 ppb und bei Spannungsintensitätsfaktoren unterhalb von  $30 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ .
- SpRK-Risswachstumsversuch mit der anfälligen WEZ h bei tiefen  $K_I$ -Werten  $\leq 40 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ .

#### SWR/HWC-Bedingungen:

- Herstellung von  $\text{Cu}/\text{Cu}_2\text{O}/\text{ZrO}_2$ -Referenzelektroden für ECP- und pH-Messungen unter HWC-Bedingungen.
- Testbetrieb der Heisswasserkreisläufe unter HWC-Bedingungen mit ECP- und Redox-Potential-Messungen bei verschiedenen  $\text{H}_2/\text{O}_2$ -Konzentrationsverhältnissen.
- SpRK-Risswachstumsexperimente mit Chlorid, anfälliger WEZ und „Ripple Load“-Belastung und gleichzeitigem Wechsel zwischen NWC- und HWC-Bedingungen zur Überprüfung der Schutzwirkung der HWC-Fahrweise unter kritischen SWR-Bedingungen.
- Start der Untersuchungen zum Einfluss des Korrosionspotentials ECP auf das SwRK-Risswachstum bei zyklischer Belastung zur Bestimmung der kritischen Frequenz in Abhängigkeit des ECP, falls sich der zweite ICG-EAC-Ringversuch verzögern sollte.

#### ICG-EAC-Ringversuch:

- Abschlussdokumentation zu erstem ICG-EAC-Ringversuch (Phase 2a und b).
- Herstellung einer Probeneinspannvorrichtung für 0.5 T C(T) Proben.
- Start des zweiten ICG-EAC-Ringversuches mit Inconel-182-Schweissgut unter SWR/NWC-Bedingungen (Phase 4a).

#### Inconel-182-RDB-Mischnaht:

- Abschlussbericht zum PSI-Versuch.
- Vergleich der Resultate von FRI und PSI und gemeinsamer Konferenzbeitrag im Jahr 2005.
- Entscheidung über eine mögliche Fortsetzung der Zusammenarbeit.

#### Konferenzbeiträge und Publikationen:

- ICG-EAC 2004 (April 2004, Awaji Island, Japan).
- NACE Corrosion 2004 (März 2004, New Orleans, USA).
- EUROCORR 2004 (September 2004, Nizza, Frankreich).
- Einreichen von zwei Publikationen in wissenschaftlichen Zeitschriften.



## 6. Referenzen

- [1] **H.P. Seifert, S. Ritter, U. Ineichen, U. Tschanz, B. Gerodetti:** „Risskorrosion in druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von SWR“, PSI-Bericht Nr. 03-10, Schweiz, April 2003.
- [2] **H.P. Seifert, J. Heldt, U. Ineichen, U. Tschanz B. Tirbonod:** „Spannungsrissskorrosion von Stählen für Reaktor-Komponenten in Heisswasser“, BFE-Abschlussbericht, Februar 2000.
- [3] **H.P. Seifert:** „Literature Survey on the SCC of Low-Alloy Steels in High-Temperature Water“, PSI-Bericht Nr. 02-06, ISSN 1019-0643, Schweiz, Februar 2002.
- [4] **J. Heldt, H.P. Seifert:** „Stress Corrosion Cracking of Low-Alloy, Reactor-Pressure-Vessel Steels in Oxygenated, High-Temperature Water“, Nuclear Engineering and Design, Vol. 206, pp. 57 – 89, 2001.
- [5] **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Hickling:** „Environmentally-Assisted Cracking of Low-Alloy RPV and Piping Steels under LWR Conditions“, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, Stevenson, Colorado, USA, 10. – 14. August 2003.
- [6] **P. Scott, D. Tice:** „Stress Corrosion in Low Alloy Steels“, Nucl. Eng. & Design, Vol. 119, 1990, pp. 399 - 413.
- [7] **Y.S. Garud, S.R. Paterson, R.B. Dooley, R.S. Pathania, J. Hickling, A. Bursik:** „Corrosion Fatigue of Water-Touched Pressure Retaining Components in Power Plants“, EPRI TR-106696, Final Report, November 1997.
- [8] **H.P. Seifert, S. Ritter, H.P. Seifert, S. Ritter:** “Effect of Temperature and Loading Frequency on the SICC and Corrosion Fatigue Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- [9] **H.P. Seifert, S. Ritter:** “New Observations About the SCC Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels Under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- [10] **S. Hettiarachi:** “NobleChem From Concept to Operating Commercial Power Plant Application”, 10<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Lake Tahoe, Nevada, USA, 5. – 9. August 2003.
- [11] **P.L. Andresen, L.M. Young:** “Characterization of the Role of Electrochemistry, Convection and Crack Chemistry in Stress Corrosion Cracking”, Proc. 7<sup>th</sup> Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE, 1995, pp. 579 –596.
- [12] **P.L. Andresen:** “Transition and Delay Time Behavior of High Temperature Crack Propagation Rates Resulting from Water Chemistry Changes”, 1<sup>st</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, ANS/NACE/TMS, Monterey, CA, USA, Sep. 1985, pp. 84 – 92.
- [13] **S. Pathania, A. McIlree, J. Hickling:** “Overview of Primary Water Cracking of Alloys 182/82 in PWRs” 5<sup>th</sup> Fontevraud Conference “Contribution of Material Investigation to the Resolution of Problems Encountered in Pressurized Water Reactors”, CD-ROM, Fontevraud, Frankreich, 22. – 27. September 2002.

- [14] **R.M. Horn, P.L. Andresen, J. Hickling:** „BWR Alloy 182 Stress Corrosion Cracking Experience“, 5<sup>th</sup> Fontevraud Conference “Contribution of Material Investigation to the Resolution of Problems Encountered in Pressurized Water Reactors”, CD-ROM, Fontevraud, Frankreich, 22. – 27. September 2002.
- [15] **P.L. Andresen, L.M. Young, P.W. Emigh, R.M. Horn:** “Stress Corrosion Crack Growth rate behaviour of Ni Alloys 182 and 600 in High Temperature Water”, NACE Corrosion 2002, CD-ROM, Paper No. 02510, NACE, Denver, Colorado, USA, 7. – 11. April 2002.
- [16] **S. Ritter, H.P. Seifert:** „Strain-Induced Corrosion Cracking of Low-Alloy RPV-Steels under BWR Conditions“, Power Plant Chemistry, Vol. 5, No.1, 2003, pp. 17 - 29.
- [17] **S. Ritter, H.P. Seifert, S. Ritter, H.P. Seifert:** „Stress Corrosion Cracking Behaviour of Low-Alloy Reactor Pressure Vessel Steels and of a Weld Filler Material under Simulated BWR Environment“, NACE Corrosion 2003, CD-ROM, Paper No. 03664, NACE, San Diego, CA, USA, 16. – 20. März 2003.
- [18] **H.P. Seifert, S. Ritter:** “Evaluation and Assessment of the BWRVIP-60 SCC Crack Growth Curves for Low-Alloy Steels under BWR/NWC Conditions”, Minutes of the 2003 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Low-Alloy Steel Session, Paper L6, Ottawa, Kanada, 11. – 16. Mai 2003.
- [19] **H.P. Seifert, S. Ritter:** „Preliminary PSI Results of the 1<sup>st</sup> ICG-EAC Round Robin Test on CW Alloy 600 (Phase 2) under BWR Conditions“, Minutes of the 2003 Annual Meeting of the International Cooperative Group on Environmentally Assisted Cracking of Light Water Reactor Materials, Ed.: J. Hickling, Austenitic Alloys - Ni Round Robin Session, Paper AARR4, Ottawa, Kanada, 11. – 16. Mai 2003.
- [20] **H.P. Seifert, S. Ritter, H.P. Seifert, S. Ritter:** “Effect of Temperature and Loading Frequency on the SICC and Corrosion Fatigue Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- [21] **H.P. Seifert, S. Ritter:** “New Observations About the SCC Crack Growth Behavior of Low-Alloy RPV Steels Under BWR/NWC Conditions”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- [22] **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Hickling:** „Environmentally-Assisted Cracking of Low-Alloy RPV and Piping Steels under LWR Conditions“, Invited Talk, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, Colorado, USA, 10. – 14. August 2003.
- [23] **U. Ehrnstén, D. Gómez-Briceño, J. Lapeña, M. Ernestova, M. Zamboch, S. Ritter, H.P. Seifert, A. Roth, J. Föhl, F. Hüttner, T. Weissenberg:** “Inter-Laboratory Crack growth Test on Pressure Vessel Steel 20 MnMoNi 5 5 in Simulated BWR Environment”, 11<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, NACE/TMS/ANS, CD-ROM, Stevenson, WA, USA, 10. – 14. August 2003.
- [24] **S. Ritter, H.P. Seifert:** „The Effect of Chloride and Sulphate Transients on the Environmentally-Assisted Cracking Behaviour of Low-Alloy RPV Steels under Simulated BWR Conditions“, EUROCORR 2003, CD-ROM, Budapest, Ungarn, 28. September – 2. Oktober 2003.
- [25] **H.P. Seifert, S. Ritter:** “PSI Contribution to the CASTOC Round Robin on EAC of Low-Alloy RPV Steels under BWR Conditions, PSI-Bericht 01 – 08, ISSN 1019 – 0643, August 2001.

- [26] **H.P. Seifert, J. Heldt, U. Ineichen:** „Messung des Korrosionspotentials mit einer externen Ag/AgCl-Referenzelektrode“, PSI-TM-49-97-15, 14. 11. 1997.
- [27] **G. Repphun, B. Gerodetti:** „Potentialsonde für Heisswasser-Bedingungen“, PSI-AW-43-98-50, Rev.0, 24. 1. 1998.
- [28] **L. W. Niedrach:** „Electrodes for Potential measurements in Aqueous systems at High Temperature and Pressure“, *Angewandte Chemie*, Vol. 26, No. 3, 1987, pp. 161 – 169.
- [29] **P. Andresen:** „Modelling of Water and Material Chemistry Effect on Crack Tip Chemistry and Resulting Crack Growth Kinetics“, 3<sup>rd</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, ANS/NACE/TMS, pp. 301 – 312, 1988.
- [30] **L.M. Young, P.L. Andresen:** „Crack-Tip Microsampling and Growth Measurements in a 0.021%S Low-Alloy steel in High-Temperature Water“, 7<sup>th</sup> International Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, ANS/NACE/TMS, Vol. 2, pp. 1193 – 1202, Breckenridge, Colorado, USA, August 1995.
- [31] **P.L. Andresen, L.M. Young:** „Crack-Tip Microsampling & Growth Rate Measurements in Low-Alloy Steel in High-Temperature Water“, *Corrosion*, Vol. 51, pp. 223 – 233, 1995.
- [32] **B. Cheng, J. Gilman, L. Nelson, R. Pathania, C. Wood:** „BWR Water Chemistry Guidelines – 1996 Revision“, EPRI Report TR-103515-R1, Palo Alto, USA, Dezember 1996.
- [33] **S. Ritter, H.P. Seifert:** „The Effect of Chloride and Sulfate Transients on the Stress Corrosion Cracking Behaviour of Low-Alloy RPV Steels under Simulated BWR Environment“, NACE Corrosion 2004, New Orleans, USA, 28. März – 1. April 2004.
- [34] **J. Föhl, U. Ehrnstén, M. Ernestová, D. Gómez-Briceño, J. Lapeña, S. Ritter, A. Roth, B. Devrient, H.P. Seifert, T. Weissenberg, M. Žamboch:** „Crack Growth Behaviour of Low-Alloy Steels for Pressure Boundary Components under Transient Light Water Reactor Operating Conditions – CASTOC“, FISA-Conference on EU Research in Reactor Safety, Luxemburg, 10. – 12. November 2003.
- [35] **H.P. Seifert, S. Ritter, B. Gerodetti, U. Ineichen, E. Groth:** „RIKORR-II: Risskorrosion in ferritischen druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von SWR“, Handout zur RIKORRR-II-Halbjahresprojektpräsentation 2003, PSI, 8. Juli 2003.
- [36] **H.P. Seifert, S. Ritter, B. Gerodetti, U. Ineichen, E. Groth:** „RIKORR-II: Risskorrosion in ferritischen druckführenden Komponenten des Primärkreislaufes von SWR“, Handout zum HSK-PSI-Jahreprojektstatusgespräch 2003, HSK, 12. Dezember 2003.
- [37] **S. Ritter, H.P. Seifert:** „EU-5-projekt CASTOC –Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse“, Handout zum KFES-Meeting, PSI, 14. November 2003.
- [38] **D. Kalkhof, H.P. Seifert, M. Niffenegger, S. Ritter:** „Massgebende Alterungsphänomene bei metallischen Werkstoffen“, Tagungsband SVA-Vertiefungskurs „Betriebsdauermanagement der Kernkraftwerke“, SVA, pp. 2.1-1 – 2.1-22, Fachhochschule Winterthur, 27. und 28. November 2003.
- [39] **H.P. Seifert, S. Ritter, J. Hickling:** „EAC of Low-Alloy RPV and Piping Steels under BWR Conditions - Summary Presentation of ongoing Work to ASME Sect. XI“, Presentation für die „ASME BPV Working Group on Flaw Evaluation“, San Diego, USA, 25. Februar 2003.



Datum: 24.2.2004

Von: S. F. Schulz

## **Begutachtung 2003 für das Projekt DIAGNOSTIK**

### **Einleitung**

Das Forschungsprojekt DIAGNOSTIK ist die Fortsetzung des Projektes FEVER (1999 – 2002), das zum Ziel hatte, zerstörungsfreie Prüfverfahren für die Früherkennung von Materialermüdung in austenitischen Werkstoffen zu erkunden, welche auf der deformationsinduzierten Martensitbildung in der Austenitmatrix beruhen. Im Projekt FEVER konnte gezeigt werden, dass eine Ermüdungsschädigung schon vor einer Rissbildung durch Martensitbildung stattfindet und, dass diese Martensitbildung über den Nachweis des Ferromagnetismus mit verschiedenen Methoden detektiert werden kann. Es wurden wesentliche Einflussgrößen für diese Martensitbildung identifiziert und charakterisiert.

Im Projekt DIAGNOSTIK ist vorgesehen, die Einflüsse des Material-Ausgangszustandes und der Temperatur umfassend zu untersuchen, damit mittels geeigneter Modelle diese Einflüsse bei der Bewertung des Martensitgehaltes berücksichtigt werden können. Untersuchungsobjekte sind häufig in KKW verwendete austenitische Stähle, insbesondere X6CrNiTi 18-10.

Das Projekt DIAGNOSTIK erstreckt sich über den Zeitraum 7/2002 bis 6/2005 und gliedert sich in mehrere Teilprogramme, die teilweise parallel zueinander bearbeitet werden.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Nach Beschaffung und umfassender Charakterisierung von verschiedenen Proben aus X6CrNiTi 18-10 konnten die Teilprogramme "Wärmebehandlung" und "Temperatur" erfolgreich abgeschlossen werden. Mit den Teilprogrammen "Materialkennlinien", "Thermische Ermüdung" und "Modellierung" wurde begonnen, Materialkennlinien liegen bereits für mehrere Probenserien vor. Die Projektarbeiten schreiten planmässig gemäss dem Arbeitsprogramm voran.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Frage der Früherkennung von Ermüdungsschädigung an austenitischen Bauteilen mittels zerstörungsfreier Werkstoffprüfung ist aktuell. Sowohl die thermische Ermüdung durch Temperaturschichtungen, als auch Temperaturmischzonen sind rechnerisch zu ermitteln. Um technisch anspruchsvolle Reparaturen ausserhalb der geplanten Jahresrevisionsabstellung zu vermeiden, liefert die Früherkennung von Ermüdungsschädigungen eine wesentliche Hilfestellung. Das Projekt DIAGNOSTIK leistet hier seinen Beitrag für den Bereich der rostfreien austenitischen Stähle. Die Projektergebnisse sollen in die Verbesserung qualitativer oder quantitativer Prüfverfahren einfließen.

## **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Im Jahre 2004 sollen die Teilprogramme "Materialkennlinien", "Thermische Ermüdung" und "Modellierung" weiter ausgearbeitet werden, um erste praktische Erprobungen in einer Kernkraftwerksanlage zu erhalten. Die HSK schlägt hier vor, bei nicht sicherheitsrelevanten Bereichen (unklassierte Anlage-teile) zu beginnen, um die Erprobung nicht mit anlagespezifischen sicherheitstechnischen Erwägungen (auch hinsichtlich Strahlenschutz des Projektpersonals) zu belasten.

Die im Jahresbericht 2002 zum Projekt "FEVER" abgegebenen Fortsetzungsvorschläge sind im Projekt "DIAGNOSTIK" grösstenteils verwirklicht und erfolgreich umgesetzt worden. Im Interpretationskonzept) wurde beispielsweise eine quantitative Prüfmethode zur Bestimmung der Ermüdung entwickelt. Für die Praxis sollten Vorgehensweisen zur Darstellung und Interpretation von Prüfergebnissen entwickelt werden, die berücksichtigen, dass in einem realen Rohrleitungssystem selten eine vollständige Materialcharakterisierung vorliegt. Daher sollte neben einer quantitativen Methode auch die Entwicklung qualitativer Prüfverfahren ins Auge gefasst werden (z. B. Interpretation von Martensitbildungsmustern als Indikator für akkumulierte Beanspruchung, Veränderungsmonitoring des Martensitgehaltes), wenn aufgrund fehlender Basismessungen oder Analysewerte eine quantitative Bewertung nicht möglich ist. Wünschenswert ist die Verbreiterung der Datenbasis durch Untersuchung weiterer austenitischer Werkstoffe, z. B. Typ 304, und eine Abgrenzung für welche austenitischen Werkstoffe oder Produktformen eine solche Methode nicht anwendbar ist. Der Anwendungsbereich einer zukünftigen Prüfmethode kann auf der Basis der Projektergebnisse definiert und beschrieben werden.

# DIAGNOSTIK

## Diagnostik für Werkstoffschädigung durch Ermüdung

Autor und Koautoren	D. Kalkhof, H. Leber, M. Niffenegger, B. Tirbonod
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Labor für Werkstoffverhalten
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2620, <a href="mailto:dietmar.kalkhof@psi.ch">dietmar.kalkhof@psi.ch</a> , <a href="http://www.psi.ch">www.psi.ch</a> und <a href="http://lww.web.psi.ch/lwi0.htm">http://lww.web.psi.ch/lwi0.htm</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	150237
Dauer des Projekts (von – bis)	1.7.2002 bis 30.6.2005

### ZUSAMMENFASSUNG

Das Projektziel von DIAGNOSTIK besteht in der Entwicklung einer Methode zur Früherkennung von Materialermüdung in Rohrleitungen aus nichtrostendem austenitischem Stahl unter der Nutzung des Effektes der deformations-induzierten Martensitbildung. Im Projekt werden die wichtigen Einflussgrößen auf die Martensitbildung, wie Materialausgangszustand, Dehnungsamplitude und Temperatur untersucht und Möglichkeiten zur Detektion des Martensitgehaltes mit magnetischen Methoden aufgezeigt.

Die Untersuchungen zum Einfluss des Fertigungsverfahrens und der Wärmebehandlung auf die deformations-induzierte Martensitbildung zeigten, dass der Materialausgangszustand (chemische Zusammensetzung, Mikrostruktur) eine wesentliche Rolle bei der Martensitbildung spielt. Für die Materialzustände WLA (warmgefertigt und lösungsgeglüht) und KLA (kaltverformt und lösungsgeglüht) von Plattenmaterial aus X6CrNiTi18-10 ergab sich überraschenderweise ein sehr hoher Martensitanteil von mehr als 50 vol.-% bei Raumtemperatur und Rissinitiation. Verantwortlich für die starke Martensitbildung sind relativ niedrige Nickel- und Chromanteile in der Legierung sowie bereits vorhandene Deltaferrit- und Martensitanteile im Ausgangszustand. Sowohl die Ergebnisse der Neutronendiffraktions-Experimente als auch die magnetischen Messungen bestätigten, dass der Martensitanteil in den Ermüdungsproben mit ansteigender Zyklenzahl (Erschöpfungsgrad) kontinuierlich zunimmt. Das gilt für beide Materialausgangszustände gleichermaßen.

Die Untersuchungen zur Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung fanden in einem erweiterten Temperaturbereich von  $-100\text{ °C}$  bis  $260\text{ °C}$  statt. Die Beschreibung der Temperaturabhängigkeit in diesem Bereich ist von Bedeutung für die Entwicklung des Schädigungsmodells sowie zum Verständnis der Mechanismen der Martensitbildung. Für die beiden untersuchten Materialzustände ergab sich ein S-förmiger Verlauf der Temperaturabhängigkeit, der sich gut mit einer Boltzmann-Funktion beschreiben lässt. In den Temperaturkurven wurde kein wesentlicher Unterschied zwischen dem WLA- und KLA-Materialzustand festgestellt. Im Temperaturbereich, der für die thermischen Ermüdungsvorgänge in den Rohrleitungen von Interesse ist ( $60\text{ °C}$  bis  $260\text{ °C}$ ), können die Daten auch mit einer einfachen Exponentialfunktion beschrieben werden. Die magnetischen Kennwerte ergaben sehr gute Korrelationen mit den temperaturabhängigen Martensitgehalten, die mittels Neutronendiffraktometrie bestimmt wurden.

# 1 Projektziele

## 1.1 EINLEITUNG

Werkstoffalterungsvorgänge in druckführenden Primärkreislauf-Komponenten von Leichtwasserreaktoren können sowohl die Anlagensicherheit als auch ihre Verfügbarkeit und Wirtschaftlichkeit nachhaltig beeinträchtigen und spielen bei einer möglichen Lebensdauererlängerung eine entscheidende Rolle. Der heutige Wettbewerbs- und damit Kostendruck für Stromerzeugungsanlagen setzt für den wirtschaftlichen Betrieb der Kernkraftwerke auf hohem Sicherheitsniveau den Einsatz optimierter Methoden des Lebensdauermanagements voraus. Der Alterungsmechanismus der thermischen Ermüdung in Behältern und Rohrleitungen gewinnt zunehmend an Bedeutung, da die Gefahr einer Rissbildung mit der akkumulierten mikrostrukturellen Werkstoffschädigung zunimmt. Eine frühzeitige Diagnose, in welchen Zeitperioden, unter welchen Bedingungen und an welchen kritischen Stellen sich Risse ausbilden können, trägt wesentlich zum sicheren Betrieb der Kernkraftwerke bei und erhöht deren Verfügbarkeit. Risse in Komponenten und Rohrleitungen führten in der Vergangenheit weltweit mehrfach zu längerfristigen Abschaltungen von Kernkraftwerken und kostspieligen Reparaturen. Als häufigste Ursachen der Schäden wurden verschiedene Mechanismen der Risskorrosion und thermische Ermüdung festgestellt. Für die thermische Ermüdung sind besonders thermomechanische Belastungen durch Temperaturschichtungen und Mischzonen in T-Stücken und Behälterstützen von Interesse. Die Überwachung der Ermüdungsschädigung erfolgt mittels Temperaturmessung und Berechnung der akkumulierten Spannungen und Dehnungen für bestimmte anfällige Bereiche. Eine direkte Ermittlung der Ermüdungsschädigung durch Messungen von mikrostrukturellen und physikalischen Kenngrößen wird bisher an den Anlagen der Kernkraftwerke nicht durchgeführt. Weltweit laufen Forschungsprogramme, den Schädigungsgrad im Material zerstörungsfrei zu bestimmen.

Die Aufgabe der Werkstoffdiagnostik besteht darin, mikrostrukturelle und physikalische Konzepte zur Prognose der Lebensdauer von Bauteilen zu entwickeln. Sie beinhaltet die Entdeckung von Indikatoren in der Mikrostruktur, die den Alterungsprozess auslösen, beeinflussen oder zumindest begleiten sowie die zerstörungsfreie Messung entsprechender von den Indikatoren beeinflusster mechanischer und physikalischer Eigenschaften. Das technische Ziel besteht in der Entwicklung eines Lebensdauermonitors für eine bestimmte Klasse von Werkstoffen. Die Werkstoffdiagnostik nutzt mikrostrukturelle Veränderungen aus, die zeitlich weit vor der technischen Rissbildung stattfinden und ermöglicht somit die Früherkennung der Schädigung in den betroffenen Bereichen. Die elektrischen, thermoelektrischen und magnetischen Messgrößen reagieren auf alle mikrostrukturellen Veränderungen in bestimmter Weise. Der gewissenhaften Interpretation der Messergebnisse kommt deshalb besondere Bedeutung zu.

Zur Bearbeitung von Themen der Werkstoffdiagnostik sind Untersuchungen auf den Gebieten Werkstoffmechanik, Strukturanalyse und zerstörungsfreier Materialprüfung notwendig. Bei den werkstoffmechanischen Versuchen kommt es darauf an, durch mechanische oder thermische Belastungen gezielt mikrostrukturelle Schädigungen in die Materialproben einzubringen. Dies geschieht im Falle der niederzyklischen Ermüdung (thermische Schichtungen und Mischungen in Rohrleitungen) durch dehnungsgeregelte zyklische Versuche auf servohydraulischen Prüfmaschinen. Für die Analyse der Mikrostrukturen eignen sich neben den klassischen Methoden der Metallographie und Elektronenmikroskopie vor allem Beugungsmethoden auf der Basis von Neutronenstrahlung und hochenergetischem Röntgenlicht. Dazu stehen im PSI geeignete Diffraktometer in den Forschungsanlagen SINQ und SLS zur Verfügung. Mit den Methoden der Strukturanalyse können Versetzungs- und Mikrorissdichten sowie Phasenanteile und -verteilungen ermittelt werden. Auf dem Gebiet der zerstörungsfreien Werkstoffcharakterisierung liegt das grösste Potential bei den magnetischen Verfahren. Die Palette der Messmöglichkeiten reicht vom einfachen Handgerät zur Messung der Permeabilität bis hin zu Prüfautomaten mit Hochtechnologie-Sensoren zur Magnetfeldmessung.

An metastabilen austenitischen Rohrleitungsstählen treten spezielle mikrostrukturelle Veränderungen auf, die geeignet erscheinen, eine Ermüdungs-Früherkennung zu ermöglichen. Diese Stähle neigen dazu, unter der Einwirkung von aufgebrachten Dehnungen einer teilweisen Phasenumwandlung in Martensit zu unterliegen. Dabei hängt der Martensitgehalt u.a. von der akkumulierten plastischen Dehnung ab. Da der Ermüdungsprozess an das Auftreten plastischer oder wenigstens

mikroplastischer Verformungen gebunden ist, besteht die Hoffnung, den Martensitanteil im Stahl als Indikator der Ermüdungsschädigung (Erschöpfungsgrad D) zu nutzen.

Das von der HSK mitfinanzierte Vorprojekt (FEVER, 1999-2002) untersuchte mikrostrukturelle, mechanische und magnetische Veränderungen während der Ermüdungsvorgänge in einem speziellen metastabilen austenitischen Stahl unter spezifischen Last- und Temperaturbedingungen [1-3]. Als Ergebnis dieses Vorprojektes konnte festgestellt werden, dass unter den gegebenen Versuchsbedingungen eine Ermüdungsfrüherkennung an diesem Stahl mittels magnetischer Methoden möglich ist. Das Folgeprojekt DIAGNOSTIK untersucht nun systematisch die Einflussgrößen auf die deformations-induzierte Martensitbildung und erstellt die Ermüdungs-Materialkennlinien für einen ausgewählten Rohrwerkstoff. Dabei muss insbesondere darauf geachtet werden, dass die Lebensdauerkenlinien vom Materialausgangszustand (Fertigungsverfahren, Wärmebehandlung) abhängen. Weitere PSI-Untersuchungen zur Martensitbildung unter Ermüdungsbedingungen fanden im Rahmen eines EU-Projektes statt (GRETE, 1999-2003). Hier wurden einige zerstörungsfreie Methoden zur Detektion des Martensits und zur Bestimmung des Martensitgehaltes erprobt (magnetische Methoden, Ultraschall-Verfahren, Neutronendiffraktometrie, Metallographie, Mikroskopie).

## 1.2 PROJEKTZIELE 2003

Das Ziel des Projektes DIAGNOSTIK besteht in der Entwicklung einer Methode zur Früherkennung von Materialermüdung in Rohrleitungen aus rostfreien austenitischem Stahl unter der Ausnutzung des Effektes der deformations-induzierten Martensitbildung. Das Arbeitsprogramm ist dabei in folgende Teilschritte unterteilt.

<b>Zeitperiode</b>	<b>Teilprogramme</b>
<b>7/2002 – 6/2003</b>	Materialbeschaffung, Materialcharakterisierung, Probenfertigung, Teilprogramme Temperatur und Wärmebehandlung, Aufbau einer Versuchsanlage für thermische Ermüdung.
<b>7/2003 – 6/2004</b>	Teilprogramme Materialkennlinien und Thermische Ermüdung, Messungen an beanspruchten Rohrleitungen im Kernkraftwerk Beznau.
<b>7/2004 – 6/2005</b>	Teilprogramme Materialkennlinien und Thermische Ermüdung (Fortsetzung), Messungen im Kernkraftwerk Beznau (Fortsetzung), Schlussfolgerungen und Berichte.
<b>Fortlaufend</b>	Entwicklung eines thermodynamischen Werkstoffmodells zur deformations-induzierten Martensitbildung in rostfreien austenitischen Stählen

**Tabelle 1:** Übersicht und Zeittafel der Teilprogramme DIAGNOSTIK

Das Arbeitsprogramm besteht aus insgesamt 6 Teilprogrammen, die teilweise parallel oder nacheinander durchgeführt werden. Als Untersuchungsmaterial wird für alle Teilprogramme der titanstabilisierte austenitische Stahl X6CrNiTi18-10 (DIN-Werkstoffnummer 1.4541, AISI 321) eingesetzt, der in der Industrie als Rohrleitungswerkstoff weit verbreitet ist. In früheren Untersuchungen am PSI konnte festgestellt werden, dass der Materialausgangszustand sehr entscheidend zur Anfälligkeit gegenüber deformations-induzierter Martensitbildung beiträgt. Deshalb wird Material aus 2 verschiedenen Herstellverfahren untersucht:

- warmgewalztes und lösungsgeglühtes Plattenmaterial
- geschmiedetes, warmgewalztes und lösungsgeglühtes Rohrmaterial



Ein Teil der Materialproben des Plattenmaterials wurde kaltverformt (10% statische Dehnung) und anschliessend wieder lösungsgeglüht (Zustand KLA), um eine Kaltfertigung mit Lösungsglühung zu simulieren. Der andere Teil der Plattenproben verblieb im Ausgangszustand (Zustand WLA). Die Rohre hingegen wurden aus einer Fertigungscharge erworben, die ursprünglich zum Einsatz als Volumenausgleichsleitung in einem deutschen Kernkraftwerk vorgesehen war. Aus Platten- und Rohrleitungsmaterial wurden Proben zur Durchführung der Materialcharakterisierung und zur Durchführung der Ermüdungsversuche gefertigt.

Das **Teilprogramm Wärmebehandlung** sieht vor, den Einfluss des herstellungsbedingten Materialausgangszustandes auf die Ermüdungsfestigkeit und Martensitbildung zu untersuchen. Die Tabelle 2 gibt einen Überblick der Material- und Versuchsbedingungen, die im Rahmen dieses Teilprogrammes untersucht wurden.

Material X6CrNiTi18-10	Plattenmaterial
Materialzustand WLA	Warmgefertigt, lösungsgeglüht
Materialzustand KLA	Kaltgezogen (10%), lösungsgeglüht
Lastverhältnis R	Wechselast, R = -1.0
Totale Dehnungsamplitude $\Delta\varepsilon_t / 2$ [%]	0.30, f = 0.5 Hz
Erschöpfungsgrad D	1.0, 0.8, 0.6, 0.4
Temperatur T [°C]	$-150 \leq T \leq +260$
Proben	Zugversuche 16, Ermüdungsversuche 60

**Tabelle 2:** Material- und Versuchsparameter für die Teilprogramme Wärmebehandlung und Temperatur

Eine weitere wichtige Einflussgrösse auf den Volumenanteil Martensit, der sich im Verlaufe der Ermüdungsbeanspruchung in den Materialproben bildet, ist die Temperatur. Zur Bewertung des an den Rohrleitungen im Kraftwerk gemessenen Martensitgehaltes ist es notwendig, die Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung zu kennen und den Material- und Versuchsbedingungen entsprechende Temperatur-Kennlinien zu erstellen. Das **Teilprogramm Temperatur** untersucht mittels der Proben in Tabelle 2 systematisch die Temperaturabhängigkeit für die Materialzustände KLA und WLA.

Das für den praktischen Einsatz der zu entwickelnden Methode relevante Untersuchungsmaterial ist der Rohrwerkstoff. Für dieses Originalrohrbauteil sind die Kennlinien des Martensitanteils in Abhängigkeit der Lastwechselzahl (Erschöpfungsgrad, Lebensdauer) und der Temperatur zu bestimmen. Das **Teilprogramm Materialkennlinien** hat zum Ziel, die ermüdungsbedingte Martensitbildung im Rohrmaterial unter dem Einfluss variabler Dehnungsamplituden, Mitteldehnungen, Erschöpfungsgrade und Temperaturen zu untersuchen. Die Material- und Versuchsbedingungen für das Programm Materialkennlinien sind in Tabelle 3 zusammengefasst.

Material X6CrNiTi18-10	Rohrmaterial 219.1 x 18 mm DWR- Volumenausgleichsleitung (VAL)
Materialzustand WLA	Geschmiedet, warmgewalzt, lösungsgeglüht
Lastverhältnis $R_e$	$R_e = -1.0, 0, 0.5$
Totale Dehnungsamplitude $\Delta\varepsilon_t / 2$ [%]	0.30, 0.35, 0.40, 0.45, 0.50, $f = 0.5$ Hz
Erschöpfungsgrad D	1.0, 0.8, 0.6, 0.4, 0.2
Temperatur T [°C]	$-150 \leq T \leq +260$
Proben	Zugversuche 16, Ermüdungsversuche 250

**Tabelle 3:** Material- und Versuchsparameter für das Teilprogramm Materialkennlinien (Rohr)

Bisher wurde die Martensitbildung bei zyklischer mechanischer Last (Dehnung) und konstanter Versuchstemperatur untersucht. Da sowohl die Materialeigenschaften als auch die Martensitbildungsrate von der Temperatur abhängen und in der Praxis die Ermüdungsschäden oft durch zyklisch auftretende thermische Lasten entstehen, wurde das **Teilprogramm Thermische Ermüdung** entwickelt. Ziel ist es, die Materialschädigung durch zyklische Temperaturänderungen oder auch durch eine Kombination aus mechanischen und thermischen Lastwechseln einzubringen. Im Rahmen des Teilprogrammes ist vorgesehen, ausgehend von einer bestehenden Zeitstandanlage mehrere Versuchsstände (3) zur Durchführung von thermischen Ermüdungsversuchen aufzubauen. Inzwischen ist der Umbau erfolgreich abgeschlossen und die Versuche konnten begonnen werden. Bis Rissinitiierung wird mit einer Versuchszeit von mehreren Monaten gerechnet.

Ein weiterer Schritt, die Versuchsergebnisse und Methode auf die Anlagenpraxis zu übertragen wird darin gesehen, dass an bereits thermisch ermüdeten Rohrabschnitten Messungen vor Ort in den Kernkraftwerken mit den magnetischen Messtechniken durchgeführt werden. Das **Teilprogramm Messungen im KKB** untersucht spezielle Rohrstücke, die durch Temperaturschichtungen und Mischzonen thermisch beansprucht wurden, im Vergleich zum entsprechenden Ausgangszustand des Werkstoffes. Die Messungen sind für das Jahr 2004 vorgesehen.

Fortlaufend werden alle experimentellen Arbeiten durch ein Modellierungs-Teilprojekt unterstützt. Das Ziel des **Teilprogramms Modellierung** besteht darin, den ermüdungsbedingten Martensitanteil im untersuchten Rohrwerkstoff für unterschiedliche Lastfolgen (Dehnungs- und Temperaturzyklen) zu berechnen. Mit Hilfe des Materialmodells kann die Martensitbildung bei Ermüdung für eine Vielzahl von praxisrelevanten Beanspruchungen ermittelt werden. Somit sollte das Modell in der Lage sein, wichtige Beiträge zu den Einflussgrößen und Bildungsmechanismen als auch bei der Übertragung der Methode auf die Anlagentechnik der Kernkraftwerke zu leisten.

Im vorliegenden Jahresbericht werden Ergebnisse aus den folgenden Teilprogrammen dargelegt:

- Wärmebehandlung (Abschluss)
- Temperatur (Abschluss)
- Materialkennlinien (erste Ergebnisse)
- Modellierung (aktueller Stand)

## 2 Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### 2.1 EINFLUSSGRÖSSEN AUF DIE DEFORMATIONS-INDUZIERTER MARTENSITBILDUNG

#### 2.1.1 Einfluss des Materialausgangszustandes (Wärmebehandlung)

Die bisherigen Untersuchungen haben gezeigt, dass der Materialzustand (chemische Zusammensetzung, Mikrostruktur) einen wesentlichen Einfluss auf die Martensitbildung ausübt [2]. An den Primärkreislauf-Rohrleitungen in den Kernkraftwerken können zwei mögliche Lieferzustände auftreten: Warmgewalzt und lösungsgeglüht (WLA) sowie kaltgewalzt und lösungsgeglüht (KLA). An Plattenmaterial aus X6CrNiTi18-10 wurden die Auswirkungen von Warm- und Kaltfertigung auf die deformations-induzierte Martensitbildung untersucht. Der Zustand der Kaltfertigung wurde durch eine vorgängige Kaltverformung der Ermüdungsproben mit 10% Dehnung simuliert. Nach der Kaltverformung wurden die Proben wiederum lösungsgeglüht. Der Ausgangszustand der Platten entsprach dem Behandlungszustand WLA.

Die Ergebnisse der Zugversuche von unterschiedlichen Materialzuständen des rostfreien austenitischen Stahles X6CrNiTi18-10 sind in Abb. 1 zusammengestellt. In Ergänzung der beiden Plattenmaterial-Zustände WLA und KLA sind Ergebnisse aus dem Vorprojekt FEVER, kaltgezogenes und lösungsgeglühtes Stangenmaterial sowie Ergebnisse des Rohrmaterials beigelegt. Die Kaltverformung des Stangenmaterials führt zur Verfestigung des Materials, das sich in der Erhöhung der 0.2%-Dehngrenze ausdrückt. Das lösungsgeglühte Stangenmaterial erreicht hingegen die niedrigste Dehngrenze. Die Materialzustände für das Plattenmaterial liegen zwischen dem kaltverformten und lösungsgeglühten Zustand der Stange. Dabei bleibt der Unterschied im Verhalten von WLA und KLA relativ gering. Der KLA-Zustand weist sogar eine leicht geringere Dehngrenze auf als der Ausgangszustand WLA. Der Grund dafür ist in den unterschiedlichen Abmessungen bei der Lösungsglühung zu sehen (kleine Proben und dicke Platten). Die Zugversuche des Rohrmaterials zeigen eine leicht unterschiedliche Form im Kurvenverlauf. Der Verlauf entspricht eher dem kaltverformten Stangenmaterial verschoben auf die 0.2%-Dehngrenze des WLA-Plattenzustandes. Insgesamt lässt sich feststellen, dass die Materialzustände durch ihre unterschiedlichen Spannungs-Dehnungs-Kurven eindeutig charakterisiert sind.

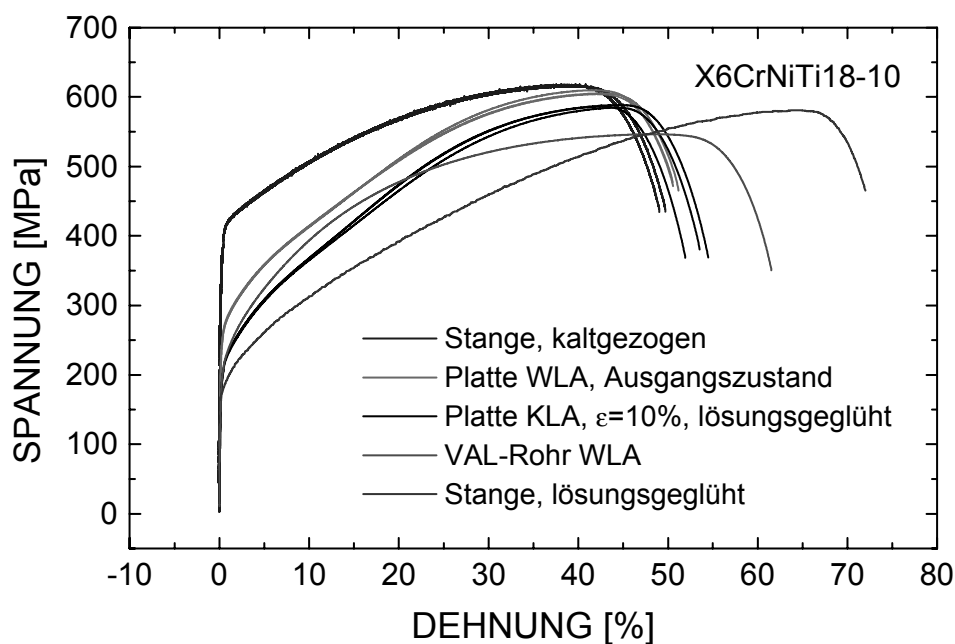
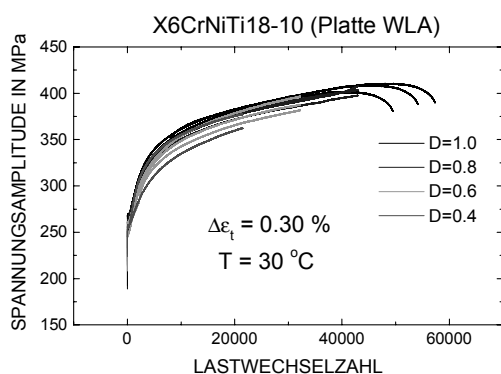


Abb. 1: Spannungs-Dehnungs-Diagramme für unterschiedliche Materialausgangszustände

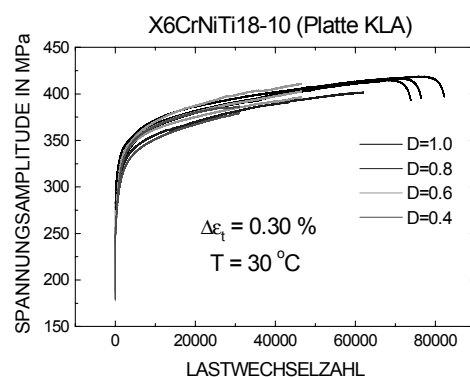
Im Rahmen der Teilprogramme Wärmebehandlung und Temperatur wurden aus dem Plattenmaterial jeweils 30 Ermüdungsproben für WLA und KLA gefertigt und untersucht. Die Ermüdungskurven der totaldehnungsgeregelten Versuche (Dehnungsamplitude: 0.30%) für Raumtemperatur sind in den Abbildungen 2 und 3 dargestellt. Zunächst wurde die Lastwechselzahl für die Rissinitiation an jeweils 3 Proben bestimmt ( $D=1$ ). Als Abbruchkriterium diente der 5%-Abfall bezogen auf die maximale Spannungsamplitude. Die beiden Materialzustände WLA und KLA ergaben leicht unterschiedliche Risseinleitungs-Lastwechselzahlen. Der gemittelte Wert für WLA betrug 53'700 Lastwechsel. Für den Zustand KLA ergab sich ein Wert von 77'500. Ausgehend von der Risseinleitung wurden die Lastwechselzahlen für die Erschöpfungsgrade 0.4 bis 0.8 entsprechend reduziert und die Ermüdungsversuche bis zu den entsprechenden Vorschädigungen gefahren. Im Gegensatz zu den Untersuchungen im Vorprojekt FEVER zeigten die Ermüdungskurven eine durchgehende, relativ starke, zyklische Verfestigung. Phasen von Entfestigung konnten nicht beobachtet werden. Die Streuungen im Kurvenverlauf blieben sehr gering, so dass eine sehr gute Reproduzierbarkeit gewährleistet war.

Nach den Ermüdungsversuchen für unterschiedliche Erschöpfungsgrade (Lastwechselzahlen) wurden der Martensitgehalt und die Martensitverteilung in den Proben mit den Methoden der Metallographie, Neutronendiffraktometrie und mittels magnetischer Verfahren analysiert. Als Referenzmethode zur Bestimmung des mittleren Martensitgehaltes im Messvolumen der Proben ( $d=10\text{mm}$ ,  $l=20\text{mm}$ ) kam die Neutronendiffraktometrie zum Einsatz. Gemessen wurde am Diffraktometer DMC an der SINQ des PSI. In der Abbildung 4 ist der ermittelte Volumenanteil Martensit in Abhängigkeit der Lastwechselzahl für die Materialzustände WLA und KLA des Plattenmaterials im Vergleich zum Stangenmaterial dargestellt. Überraschenderweise kam es für beide Ausgangszustände des Plattenmaterials zu einer enorm starken Martensitbildung. Die Martensitgehalte erreichten bei Rissinitiation mehr als 50 vol.% (Dehnungsamplitude 0.30%). Im Vergleich dazu wurden für die kaltgezogenen Stangenproben ca. 10 vol.% (Dehnungsamplitude 0.40%) und die lösungsgeglühten Stangenproben ca. 3 vol.% Martensit gemessen. Die Ursachen für die starke Martensitbildung des Plattenmaterials liegen in der chemischen Zusammensetzung und der Mikrostruktur begründet. Sie werden im Kapitel 2.2 detailliert vorgestellt und diskutiert. Wichtig zu erwähnen bleibt, dass die unterschiedliche Wärmebehandlung keinen Einfluss auf die Materialkennlinie der Lastwechselzahl-Abhängigkeit des Martensitgehaltes hatte. Bei der Zuordnung zum Erschöpfungsgrad muss jedoch zwischen WLA und KLA unterschieden werden.

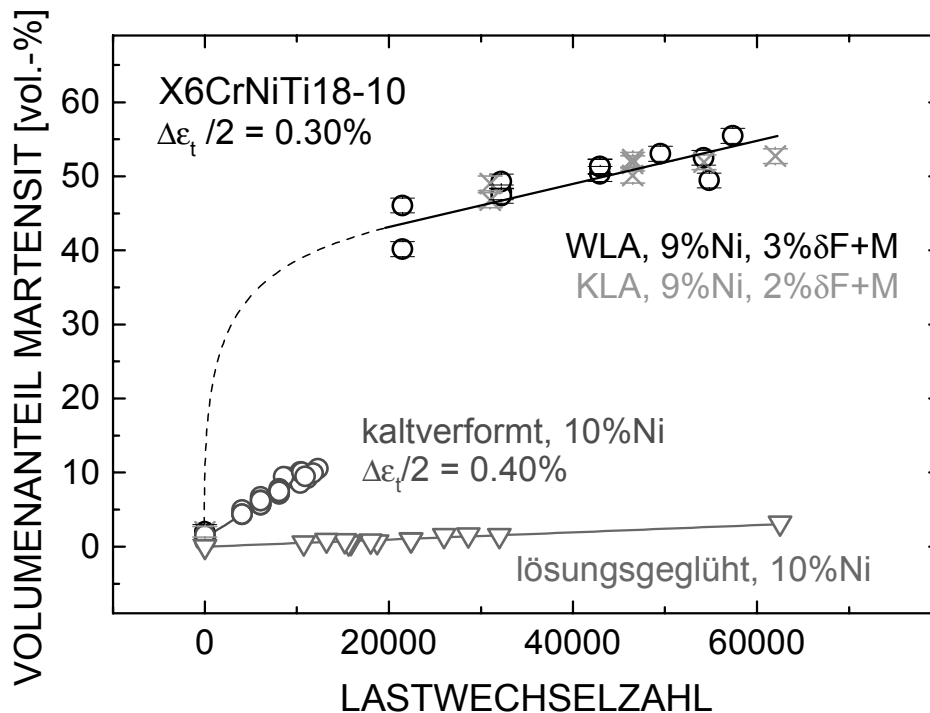
Mit den dargestellten Ergebnissen ist das **Teilprogramm Wärmebehandlung** abgeschlossen.



**Abb. 2:** Ermüdungskurven bei Raumtemperatur für den Platten-Materialzustand WLA und unterschiedliche Erschöpfungsgrade  $D$ :



**Abb. 3:** Ermüdungskurven bei Raumtemperatur für den Platten-Materialzustand KLA und unterschiedliche Erschöpfungsgrade  $D$ .



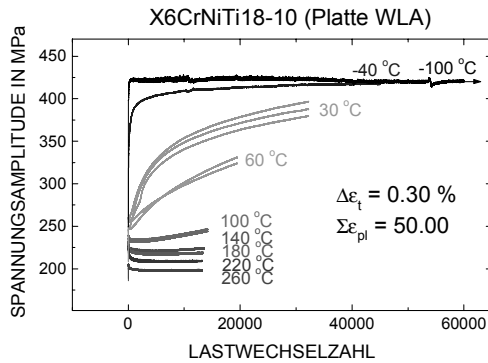
**Abb. 4:** Abhängigkeit des Martensitgehaltes von der Lastwechselzahl (Erschöpfungsgrad) bei Raumtemperatur für unterschiedlich Materialausgangszustände

### 2.1.2 Einfluss der Temperatur

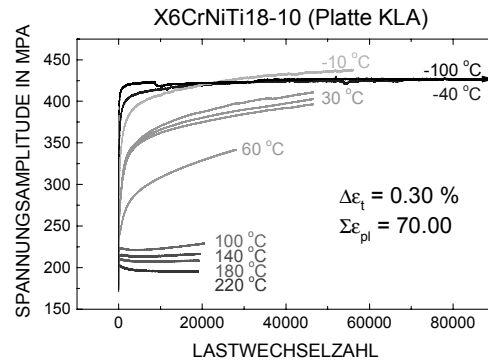
In den bisherigen Ermüdungsversuchen wurde die Martensitbildung im Temperaturbereich von 20 bis 300 °C untersucht (FEVER). Dieser Temperaturbereich ist relevant für thermische Ermüdungsvorgänge durch Schichtungen und Mischzonen in den Rohrleitungen der Kernkraftwerke. Es wurde für das Stangenmaterial festgestellt, dass der Martensitgehalt bei steigenden Temperaturen erwartungsgemäss abnahm. Zumindest jedoch bis 260 °C konnten Anteile an deformationsinduziertem Martensit gemessen werden. Für die Bewertung des an Rohrleitungen gemessenen Martensitgehaltes ist es notwendig, die Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung zu kennen und wenn möglich mit geeigneten Funktionen zu beschreiben. Aus diesem Grund wurde entschieden, die Martensitbildung im erweiterten Temperaturbereich von -100 °C bis 260 °C zu untersuchen. Im Zusammenhang mit der metallographischen Auswertung werden zudem wichtige Hinweise zu den Martensitbildungsmechanismen erwartet.

Die Ermüdungs-Temperaturversuche für die Platten-Materialzustände WLA und KLA wurden für alle Temperaturen bei einer akkumulierten plastischen Dehnung von 50.00 (WLA) bzw. 70.00 (KLA) abgebrochen, das einem Erschöpfungsgrad von  $D=0.6$  entsprach. Die abweichenden Werte für die akkumulierte Dehnung für WLA und KLA ergeben sich aus den unterschiedlichen Lastwechselzahlen bei Rissinitiation für beide Zustände. Die Versuche wurden totaldehnungsgeregelt mit einer Dehnungsamplitude von 0.30 % gefahren. Die Ermüdungskurven der Materialzustände WLA und KLA sind für alle Temperaturen in den Abbildungen 5 und 6 zusammengefasst. Für beide Zustände gilt, dass bei höheren Temperaturen  $\geq 140$  °C ein Sättigungsverhalten ohne Verfestigung auftritt, bei Temperaturen von  $30$  °C  $\leq T \leq 140$  °C eine ausgeprägte und kontinuierliche Verfestigung stattfindet und bei Temperaturen  $\leq -10$  °C in den ersten 100 Lastwechseln das Material

sehr stark verfestigt und im weiteren Ermüdungsverlauf ein Sättigungsverhalten mit leicht ansteigender Tendenz zu beobachten ist. Nach den Ermüdungsversuchen wurden die Proben mittels Metallographie, REM, Neutronendiffraktometrie und magnetischen Methoden analysiert.



**Abb.5:** Ermüdungskurven in Form Spannungsamplitude vs. Lastwechselzahl bei totaldehnungsgeregelter Versuchsdurchführung, Erschöpfungsgrad 0.6, unterschiedliche Temperaturen, Materialzustand WLA.



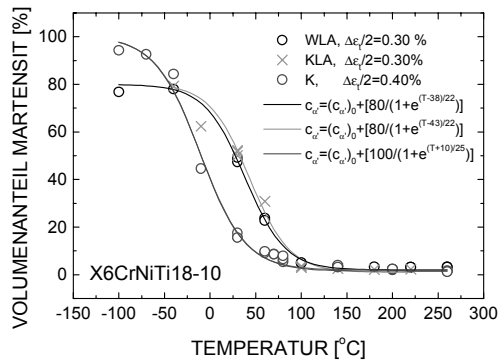
**Abb.6:** Ermüdungskurven in Form Spannungsamplitude vs. Lastwechselzahl bei totaldehnungsgeregelter Versuchsdurchführung, Erschöpfungsgrad 0.6, unterschiedliche Temperaturen, Materialzustandes KLA.

Die Abbildungen 7 und 8 zeigen die Ergebnisse der Martensitgehaltsbestimmung mittels Neutronendiffraktometrie für unterschiedliche Temperaturbereiche. Die Abbildung 7 stellt den gesamten Temperaturbereich  $-100 \text{ °C} \leq T \leq 260 \text{ °C}$  dar, der für die Martensitumwandlung von Bedeutung ist. Die Abbildung 8 beschränkt sich auf den Temperaturbereich  $60 \text{ °C} \leq T \leq 260 \text{ °C}$ , der für die thermische Ermüdung in den Rohrleitungen anzuwenden ist. In Ergänzung und zum Vergleich zu den beiden Platten-Materialzuständen sind die Ergebnisse des kaltgefertigten Stangenmaterials in die Diagramme beigefügt.

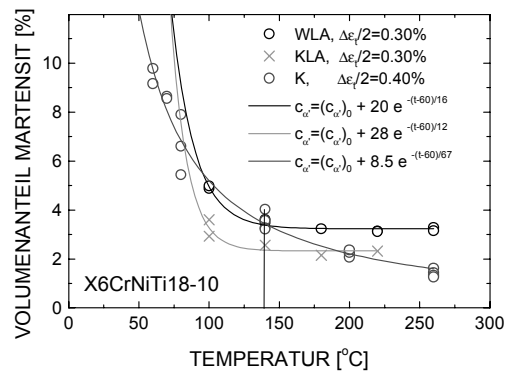
Die Abbildung 7 zeigt, dass die Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung als S-förmiger Verlauf beschrieben werden kann. Bei den beiden Materialzuständen WLA und KLA treten dabei keine wesentlichen Unterschiede der Martensit-Temperatur-Kurven auf. Bei einem anderen Materialzustand sowie bei unterschiedlichen Dehnungsamplituden kommt es zu einer Verschiebung der Kurve horizontal zur Temperaturachse, wie der Vergleich zu den Ergebnissen des Stangenmaterials dokumentiert. Für den Anlagenbetrieb geben die Diagramme wichtige Hinweise auf kritische Temperaturbereiche, in denen eine grosse Anfälligkeit gegenüber deformations-induzierter Martensitbildung für den gegebenen Materialzustand besteht und die infolgedessen zu vermeiden sind. Im vorliegenden Fall sollten Temperaturen  $\leq 100 \text{ °C}$  bei thermischen Ermüdungsvorgängen vermieden werden. Die temperaturabhängigen Martensitdaten lassen sich sehr gut mit Boltzmann-Funktionen beschreiben, das Extrapolationen insbesondere zu kleinen Temperaturen hin erlaubt und somit die Bestimmung der maximalen Martensitgehalte (Modellentwicklung).

In der Abbildung 8 ist zu erkennen, dass im Arbeits-Temperaturbereich der Kraftwerke ein deutlicher Unterschied in den Temperaturkurven von Stangen- und Plattenmaterial besteht. Beim Stangenmaterial nimmt der Martensitgehalt mit steigender Temperatur kontinuierlich ab. Bei den beiden Materialzuständen des Plattenmaterials sind die Martensitanteile bei höheren Temperaturen bis  $140 \text{ °C}$  konstant und entsprechen dem Gehalt im Ausgangszustand. Hingegen bei Temperaturen  $\leq 100 \text{ °C}$  kommt es zu einem starken Anstieg der Martensitbildung. Die Martensit-Temperaturkurven im Bereich  $60 \text{ °C} \leq T \leq 260 \text{ °C}$  lassen sich vereinfacht mit einer abfallenden Exponentialfunktion beschreiben.

Mit den dargestellten Ergebnissen ist das **Teilprogramm Temperatur** abgeschlossen.



**Abb. 7:** Mittels Neutronendiffraktometrie bestimmter Martensitgehalt in Abhängigkeit der Temperatur für unterschiedliche Materialzustände; Datenfit mit Boltzmann-Funktion.



**Abb. 8:** Mittels Neutronendiffraktometrie bestimmter Martensitgehalt in Abhängigkeit der Temperatur für unterschiedliche Materialzustände für den Arbeitsbereich der Kraftwerkstechnik; Datenfit mit abfallender Exponentialfunktion.

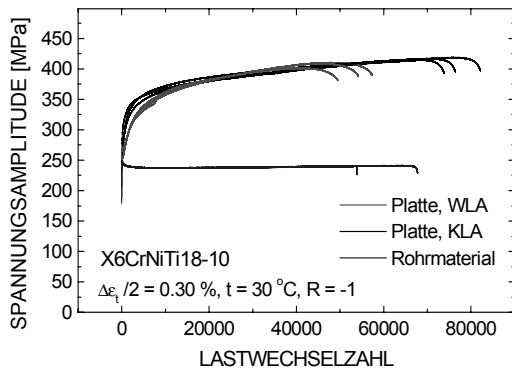
### 2.1.3 Materialkennlinien für das Original-Rohrmaterial (Volumenausgleichsleitung)

Das wesentliche Untersuchungsmaterial im Projekt DIAGNOSTIK besteht aus Rohrleitungsstücken, die für den Einsatz in einem deutschen DWR-Kernkraftwerk als Volumenausgleichsleitung gefertigt wurden. Die Materialcharakterisierung wird in Kap. 2.2 beschrieben. Für diesen Materialzustand werden im Rahmen des Projektes umfassend die Materialkennlinien erfasst, die bei entsprechend positiven Ergebnissen eine Anwendung der Methode zur Früherkennung von Ermüdungsschädigung ermöglichen würde. Folgende Materialkennlinien werden untersucht:

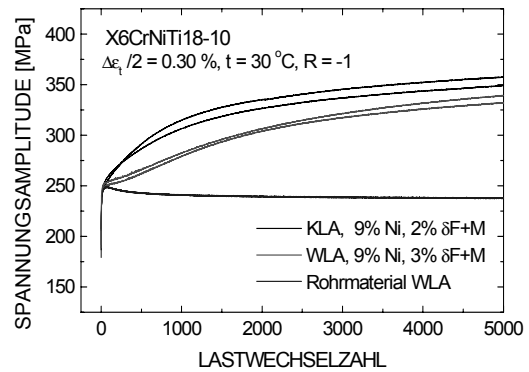
- Martensitgehalt in Abhängigkeit der Lastwechselzahl (Erschöpfungsgrad, Lebensdauer) für unterschiedliche Last-Dehnungsamplituden und Mitteldehnungen,
- Martensitgehalt in Abhängigkeit der Temperatur für unterschiedliche Last-Dehnungsamplituden.

Erste Probenserien wurden bei unterschiedlichen Dehnungen und Temperaturen ermüdet. Die nachfolgenden Ergebnisse vermitteln einen ersten Eindruck vom Materialverhalten bei Ermüdung.

Die Abbildungen 9 und 10 zeigen totaldehnungsgeregelte Ermüdungskurven bei Raumtemperatur für das Rohrmaterial im Vergleich zu den beiden Materialzuständen des Plattenmaterials. Während das Plattenmaterial einer ständigen Verfestigung unterliegt, kommt es beim Rohrmaterial in den ersten 100 Lastwechseln zu einer kurzzeitigen Verfestigung mit anschließender Entfestigung. Danach zeigt das Rohrmaterial ein klassisches Sättigungsverhalten mit sehr geringer sekundärer Verfestigung. Die Unterschiede im Ermüdungsverhalten von Rohr- zu Plattenmaterial sind gravierend. Das zeigt sich auch in den grossen Unterschieden der sich aus der Totaldehnungsamplitude von 0.30 % ergebenden Spannungsniveaus. Das unterschiedliche Ermüdungsverhalten in den ersten 5000 Lastwechseln ist in Abbildung 10 dargestellt. Es sind hier die anfänglich kurze Verfestigung des Rohrmaterials und die leichten Unterschiede von WLA im Vergleich zu KLA zu erkennen.



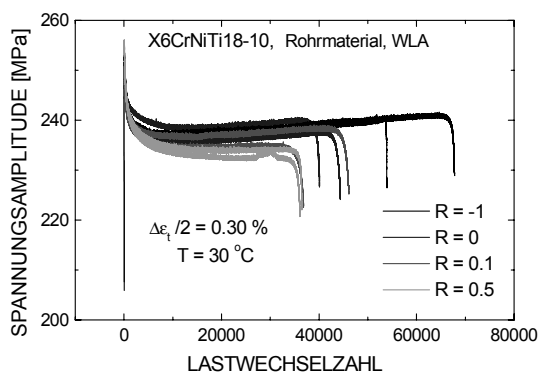
**Abb. 9:** Ermüdungskurven von Rohrmaterial im Vergleich zum Plattenmaterial.



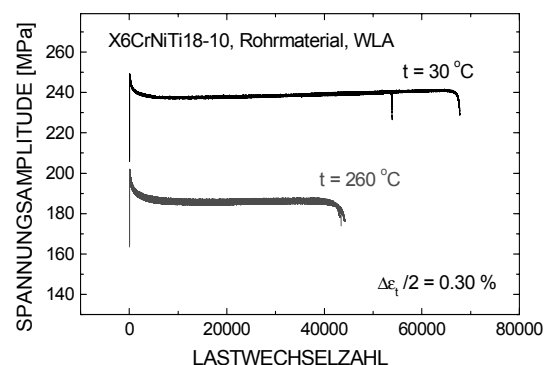
**Abb. 10:** Anfangsstadium der Ermüdungskurven für Rohr- und Plattenmaterial.

In der Abbildung 11 sind Ergebnisse dargestellt, die den Einfluss der Mitteldehnung auf das Ermüdungsverhalten beschreiben. Der Einfluss von Mitteldehnungen oder –spannungen wird durch das sogenannte Lastverhältnis  $R$  ausgedrückt. Es ergibt sich aus dem Verhältnis der unteren zur oberen Lastamplitude. Ausgehend von der Wechselbeanspruchung mit gleichen Druck- und Zugamplituden (Standardversuch,  $R=-1$ ) wurde die Mitteldehnung bei gleichbleibender Schwingbreite erhöht bis die untere Lastamplitude den Wert 0 erreichte ( $R=0$ ). Im sogenannten Schwelllastbereich (keine Druckdehnungen mehr) wurde nun die Mitteldehnung weiter erhöht über  $R=0.1$  bis  $R=0.5$ . Aufgrund der bleibenden plastischen Dehnungen ergeben sich für alle Lastverhältnisse nach wie vor Zug- und Druckspannungen. Die Ergebnisse zeigen, dass die Ermüdungsfestigkeit vom Lastverhältnis abhängt. Erwartungsgemäss nimmt die Ermüdungsfestigkeit mit steigender Mitteldehnung ab. Es wird auch eine Abhängigkeit des Martensitgehaltes vom Lastverhältnis erwartet.

In der Abbildung 12 ist ein Beispiel einer Temperaturmessung für das Rohrmaterial gezeigt. Die Ermüdungskurven für Raumtemperatur und 260 °C unterscheiden sich erwartungsgemäss in den sich ergebenden Spannungsniveaus. Der Grad der sekundären Verfestigung ist jedoch ebenfalls unterschiedlich. Aus diesem Verlauf ist anzunehmen, dass bei Raumtemperatur geringe Martensitanteile und bei 260 °C sehr geringe Anteile entstehen. Ausgehend von den bisherigen Erfahrungen mit dem lösungsgeglühten Stangenmaterial [1] kann erwartet werden, dass diese kleinen Martensitanteile mit Hilfe der Neutronendiffraktometrie und den modernen magnetischen Methoden nachweisbar sind.



**Abb. 11:** Einfluss der Mitteldehnung auf Ermüdungsfestigkeit und den Grad der sekundären Verfestigung für das Rohrmaterial (WLA).



**Abb. 12:** Einfluss der Temperatur auf Ermüdungsfestigkeit und den Grad der sekundären Verfestigung für das Rohrmaterial (WLA).



## 2.2 Mikrostrukturelle Gefügeuntersuchungen an Plattenmaterial aus 1.4541 (AISI 321)

### 2.2.1 Materialcharakterisierung des Probenmaterials (Stange, Platte, Rohr)

#### a) Zustand WLA

Warm gefertigt, lösungsgeglüht 1050 °C, Wasser abgeschreckt, gemäss Abnahmeprüfzeugnis nach EN 10204-3.1B, Bescheinigungsnr. 1000004259 vom 28.02.2002, Schmelzen-Nr. 446090

Element	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	Co	Cu	N	Ti
Soll, max	0.08	1.00	2.00	0.045	0.015	19.00		12.00				0.70
Soll, min						17.00		9.00				5-%C
Schmelze	0.040	0.40	1.27	0.019	0.001	17.09	-	9.07	-	-	0.0120	0.370
Platte	0.05	0.18	1.27	0.021	0.003	17.4	0.209	9.31	0.121	0.227	0.0120*	0.430
Stange	0.03	0.43	1.87	0.030	0.025	17.8	0.351	9.07	0.121	0.363	0.024*	0.370
Rohr	0.07	0.20	1.87	0.021	0.004	18.0	0.334	10.2	0.055	0.182	0.010*	0.517

**Tabelle 4:** Chemische Zusammensetzung (Gehalte in Massenprozenten), Schmelzanalyse der Platte und Stückanalysen der Platte, Stange (FEVER) und des Rohres

- Die Sollwerte beruhen auf EN 10088-2 – X6CrNiTi18-10 (EN 10088-2 – 1.4541)
- Die Elementgehalte ohne C, S und N für die Stückanalyse sind mittels ICP-OES durch PSI, Analytische Chemie, Lauf-Nr. 7614 vom 08.08.2003, gemessen worden.
- Die C- und S-Gehalte sind mittels Verbrennungsanalyse durch RUAG Land Systems, Werkstoff-Prüflabor STS 050, Prüfungsbericht 03163 vom 31.07.2003 gemessen worden.
- N ist im Rahmen der Stückanalyse nicht bestimmt worden; \* sind Werte der Schmelzanalyse

Die Stückanalysen zeigen, dass alle drei Erzeugnisformen mit unterschiedlichen effektiven Zusammensetzungen die Sollanalyse der Sorte X6CrNiTi18-10 (1.4541) erfüllen. Auffallend sind der sich an der unteren Grenze des Sollbereiches befindende Chrom- und Nickelgehalt der Platte.

#### b) Zustand KLA

Ermüdungsproben aus WLA-Material, zusätzlich kalt verformt,  $\epsilon = 10\%$ , lösungsgeglüht 1040 °C, 2 h, Wasser abgeschreckt.

### 2.2.2 Angenäherte Voraussage des Gefügestandes

Mit Hilfe des errechneten Chrom- und Nickeläquivalentes kann ein Stahl auf Grund seiner chemischen Zusammensetzung (Stückanalyse) im Schöffler-Diagramm positioniert werden. Das Chromäquivalent beinhaltet die Gehalte der Ferrit stabilisierenden Elemente, das Nickeläquivalent jene der Austenit stabilisierenden.

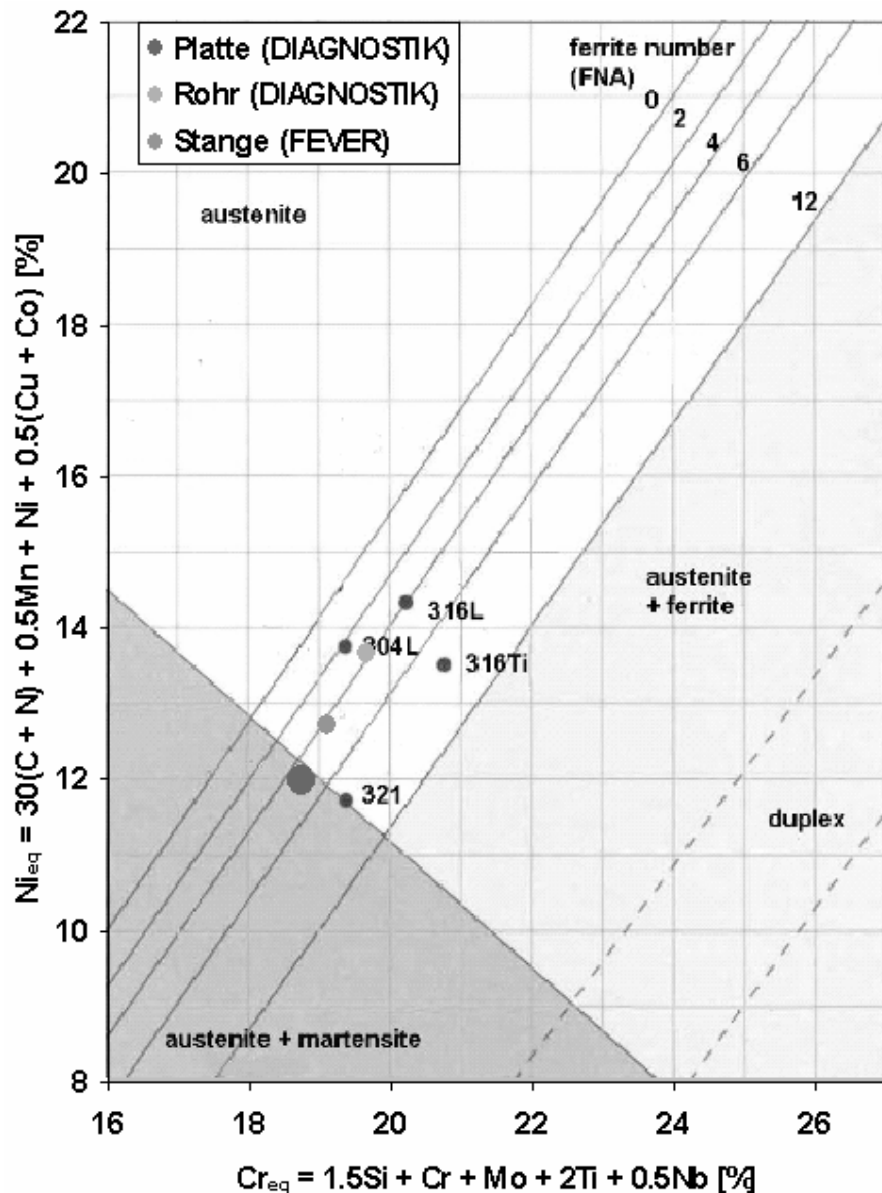
$$Cr_{eq} = 1.5 Si + Cr + Mo + 2 Ti + 0.5 Nb \text{ [%]} \quad [6] \quad (1)$$

$$Ni_{eq} = 30(C + N) + 0.5 Mn + Ni + 0.5(Cu + Co) \text{ [%]} \quad (2)$$

Für den zu untersuchenden Plattenstahl mit der Stückanalyse gemäss Tabelle 4 und den Stickstoffgehalt gemäss Schmelzanalyse ergeben sich folgende Werte:

$$Cr_{eq} = 18.74 \% \text{ und } Ni_{eq} = 11.98 \%$$

Mit diesen Werten für das Cr- und Ni-Äquivalent befindet sich das Plattenmaterial im Schöffler-Diagramm im Zweiphasengebiet Austenit + Martensit. Die beiden anderen Materialien liegen vollständig im reinen Austenitgebiet, wobei in ihnen wie auch in der Platte noch etwas Ferrit ( $\delta$ -Ferrit) zu erwarten ist. Das Stangenmaterial liegt näher bei der Platte als das Rohrmaterial. Die Position der Legierungen derselben Stahlsorte (AISI 321) wird durch die effektive chemische Zusammensetzung (Stückanalyse) bestimmt und stellt eine Annäherung dar. Daher sind die Lagen der drei Materialien weniger absolut als vielmehr relativ zueinander zu betrachten. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, dass die Tendenz des Austenits zu Martensit umzuklappen im Plattenmaterial am grössten sein wird. Zu beachten ist, dass sich unter dem Einfluss von mechanischer und/oder thermischer Belastung die Begrenzungslinie des (Austenit+Martensit) -Gebietes nach oben hin verschiebt, das die Anfälligkeit des Stangen- und Rohrwerkstoffes gegenüber deformations-induzierter Martensitbildung erklärt.

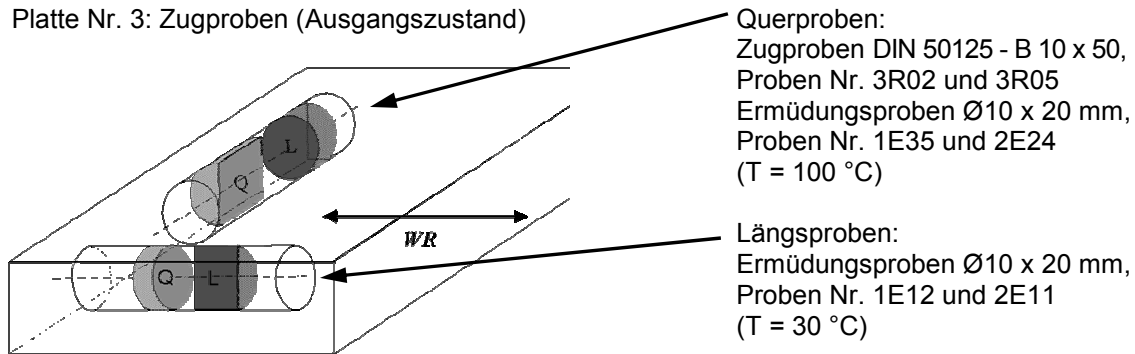


**Abb. 13:** Schöffler-Diagramm [6], Positionierung der Legierung des Plattenmaterials. Im Vergleich dazu das im Rahmen von FEVER untersuchte Stangenmaterial und das Rohrmaterial (Teilprogramm Materialkennlinien und Teilprogramm Thermische Ermüdung).

### 2.2.3 Metallographische Schliffpräparation

Aus den untersuchten Zug- bzw. Ermüdungsproben wird jeweils eine Probe längs (L) und quer (Q) zur Walzrichtung (WR) entsprechend der Abb. 14 entnommen. Die Proben werden unter Einwirkung von Temperatur und Druck in einem elektrisch leitenden Duroplasten eingebettet, damit die geschliffenen und geätzten Proben auch im Rasterelektronenmikroskop untersucht werden können.

Platte Nr. 1: Proben Zustand KLA  
 Platte Nr. 2: Proben Zustand WLA  
 Platte Nr. 3: Zugproben (Ausgangszustand)

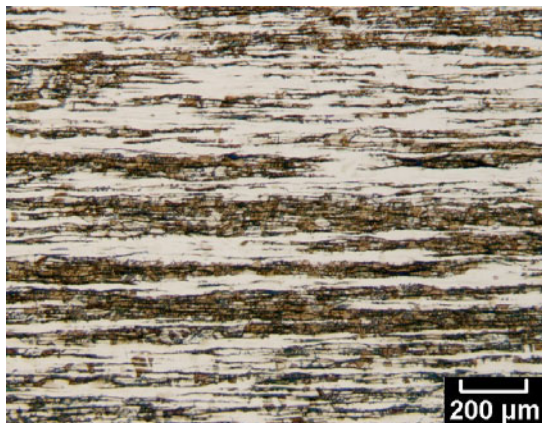


**Abb. 14:** Lage der Zug- und Ermüdungsproben in der Platte und Entnahme der Schliffproben.

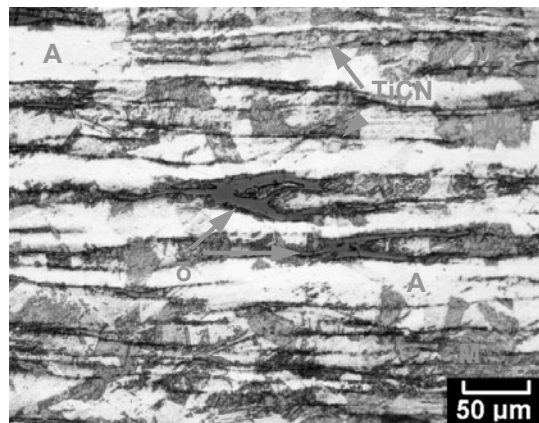
#### a) Mechanisches Polieren und Ätzen

- Nass schleifen auf Siliziumkarbidpapieren der Körnungen 180, 320, 500/600, 1200,
- Diamant polieren mit Korngrößen 3 µm, 1 µm und 0.25 µm,
- Tauchätzen in Beraha Farbätzlösung (50 ml Vorratslösung aus 5 Teilen Wasser + 1 Teil Salzsäure, 1 g Ammoniumbifluorid, 0.3 – 0.5 g Kaliummetabisulfit) während ca. 5 – 15 s.

Abb. 15 zeigt einen für den nicht ermüdeten Zustand WLA zu grossen Anteil Martensit, der den mittels Neutronendiffraktion nachgewiesenen  $\alpha'$ -Martensit-Gehalt von 1.5 bis 3 % deutlich übersteigt. Daher liegt die Vermutung nahe, dass die durch das mechanische Polieren eingebrachten Verformungsschichten einen höheren Anteil metastabiler Austenits bis in grössere Tiefen unterhalb der präparierten Schliifffläche zu Martensit umklappen lässt, als üblicherweise zu erwarten ist. Damit wird die repräsentative Gefügeausbildung verdeckt. Auf Grund dieser Beobachtung werden die Proben elektrolytisch poliert, was einen verformungslosen Materialabtrag bewirkt.



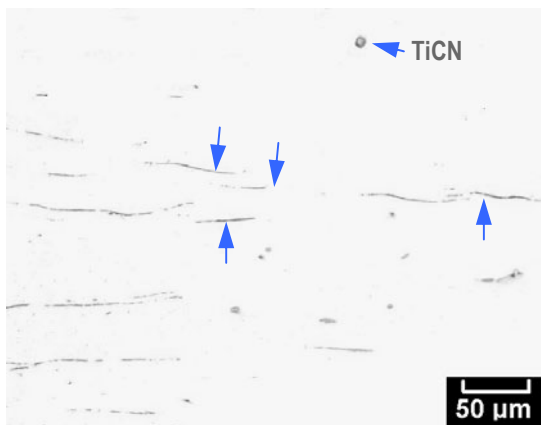
**Abb. 15a:** Plattenabschnitt WLA (Lieferzustand), Längsschnitt aus Blechmitte, hoher Martensitanteil (braun) in austenitischer Grundmasse (hell).



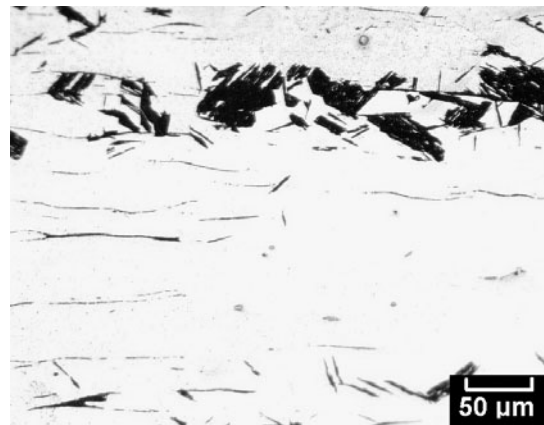
**Abb. 15b:** wie in Bild 15a, jedoch anderer Ausschnitt bei höherer Vergrößerung, Titan-Karbonitride (TiCN),  $\delta$ -Ferrit ( $\delta$ ), Martensit (M) und Austenit (A).

### b) Elektrolytisches Polieren

- Nassschleifen auf Siliziumkarbidpapieren bis Körnung 600 oder 1200,
- Elektrolytisches Polieren in 50 ml Perchlorsäure + 750 ml Äthylalkohol + 140 ml Wasser bei 19 V während 4 – 5 min,
- Tauchätzen in Beraha Farbätzlösung (wie unter a), jedoch in zwei Ätzstufen:
  1. Stufe, während 8 sec. : Sichtbar machen des Martensitanteils,
  2. Stufe, während weiteren 8 sec: Anätzen des austenitischen Grundgefüges, wobei der Martensit überätzt wird.

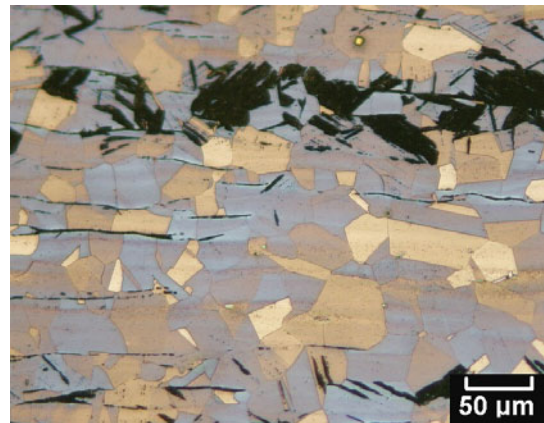


a)



b)

**Abb 16:** Zugprobe R02 längs zur WR (Ausgangsmaterial WLA: a): Polierter Zustand: Titankarbonitride (TiCN) und sulfidische und oxidische Einschlüsse (↑) in metallischer Grundmasse; b): gleicher Ausschnitt wie a), jedoch geätzt 1. Stufe: Zusätzlich wird der Martensit sichtbar (dunkel); c): gleicher Ausschnitt wie a) und b), jedoch geätzt 2. Stufe: Kornstruktur des austenitischen Grundgefüges wird sichtbar (bräunliche und gräuliche Farbtöne).



c)

Abb. 16 zeigt, dass sich die Gefügegrundmasse des Ausgangszustandes aus Austenit ohne Verformungsmerkmale wie Gleitbänder oder Mikrozwillingsgrenzen zusammensetzt. Daneben sind bereits deutliche Anteile von Martensit vorhanden.

## 2.2.4 Ergebnisse und ihre Bedeutung

### a) Martensitgehalt in Abhängigkeit der Ermüdungstemperatur

Die Abbildung 18 vermittelt eine Übersicht über die Menge und Verteilung von deformations-induziertem Martensit für die Materialzustände WLA und KLA im Ausgangszustand sowie bei unterschiedlichen Ermüdungstemperaturen. In den bei 30 °C ermüdeten Proben erreicht der Martensitanteil etwa die Hälfte der Gefügemasse. Die Aufnahmen von der Quer- und Längsschliffprobe zeigen eine vergleichbare heterogene zeilenförmige Anordnung des Martensits. Allfällige Unterschiede sind der nicht homogenen Verteilung des Martensits zuzuordnen. In allen Proben werden keine Gitterfehler wie Gleitbänder oder Mikrozwillinge, die von der plastischen Verformung während der Ermüdungsbeanspruchung herrühren, beobachtet.

### b) Rasterelektronenmikroskopische Untersuchung

Mit Hilfe der rasterelektronenmikroskopischen (REM) Untersuchung der polierten und geätzten Schiffe konnte bei höherer Vergrößerung und damit bei höherer Auflösung mehr Klarheit über die Martensitart erhalten werden. Die Abbildung 19 zeigt lattenförmigen Martensit des Typs  $\alpha'$  mit tetragonalem raumzentriertem Gitter (trz). In der Abbildung 20 können Merkmale von körnigem Martensit erkannt werden, welcher vermutlich  $\epsilon$ -Martensit mit hexagonalem Gitter dichtester Packung (hdP) darstellt. Die REM-Untersuchung bestätigt im Weiteren, dass keine Merkmale plastischer Verformung wie Gleitbänder und Mikrozwillinge vorhanden sind. Dieser Gefügebefund lässt den Schluss zu, dass der  $\alpha'$ -Martensit im vorliegenden, ermüdeten und untersuchten Plattenmaterial ein Umwandlungsprodukt des ebenfalls durch plastische Verformung entstehenden  $\epsilon$ -Martensits darstellt.

### c) Mechanismen der Martensitbildung

Aus der Literatur sind zwei mögliche Abläufe der Martensitbildung bekannt (Abb. 17). Für das Plattenmaterial ist die Bildung des  $\alpha'$ -Martensits über die Zwischenstufe des  $\epsilon$ -Martensits wahrscheinlich. Kristallografisch entsteht  $\epsilon$ -Martensit durch Verschiebung hexagonaler Atomebenen parallel zur Raumdiagonalebene des kubisch-flächenzentrierten (kfz) Austenitgitters, so dass sich die dem hdP-Gitter entsprechende Stapelfolge hexagonaler Atomebenen einstellt. In der Stahltechnik wird dieser „Transformation Induced Plasticity“ Mechanismus industriell angewendet (TRIP-Stähle) [7]. Im kalt gezogenen Stangenmaterial (FEVER) entstand der lattenförmige  $\alpha'$ -Martensit senkrecht zu den Gleitbändern bzw. Mikrozwillingsgrenzen entsprechend dem „Twinning Induced Plasticity“ Mechanismus (TWIP).

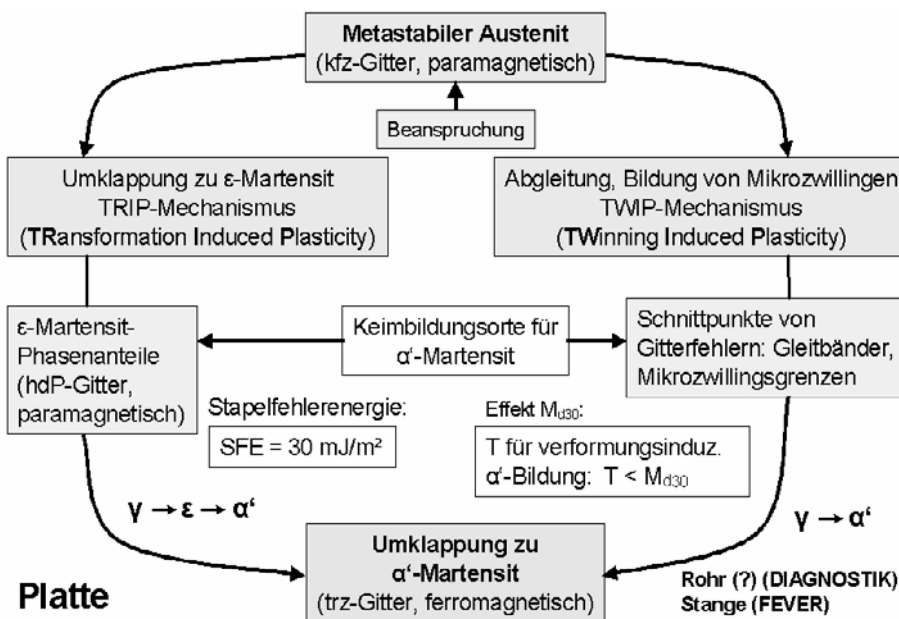
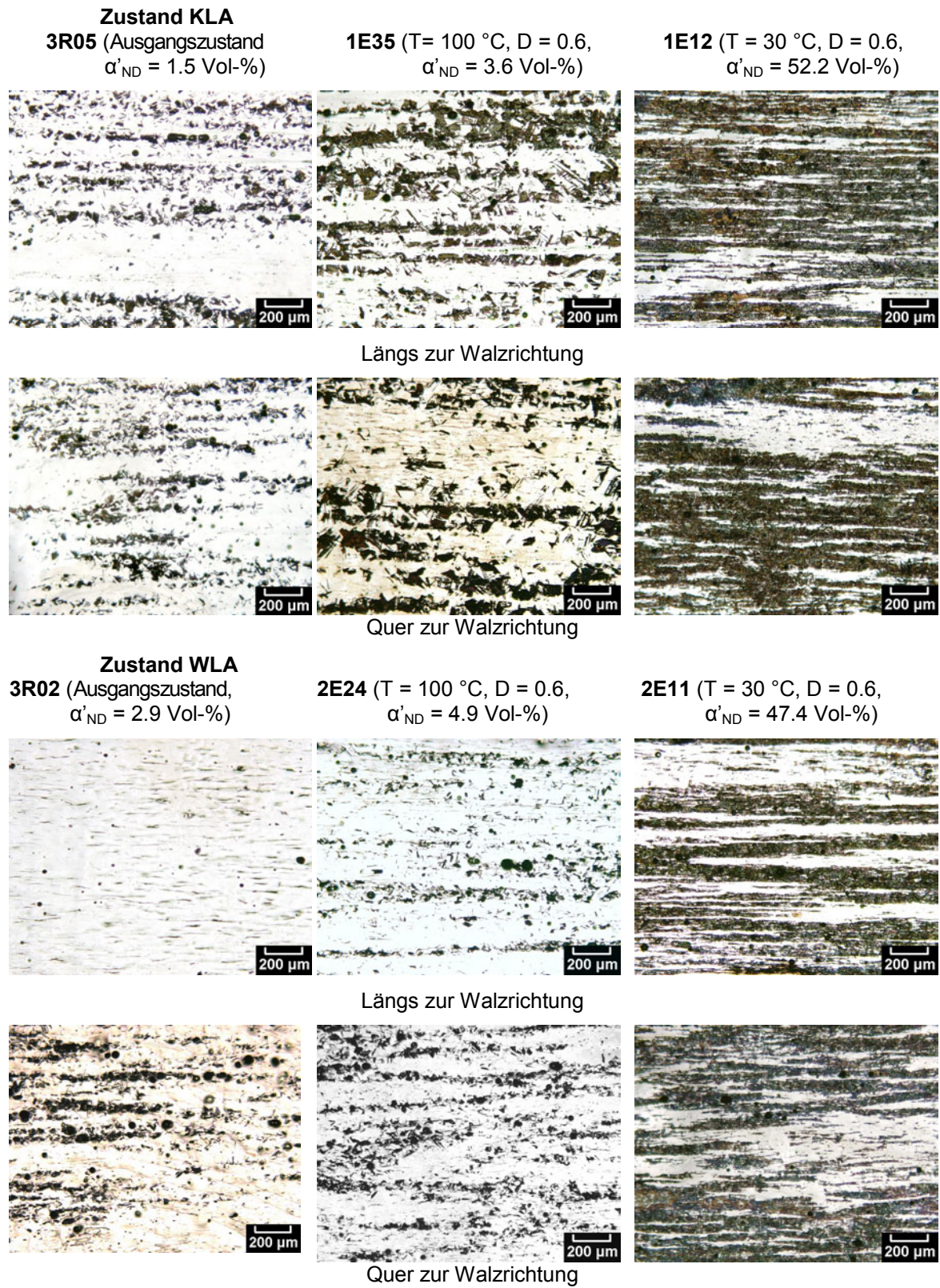
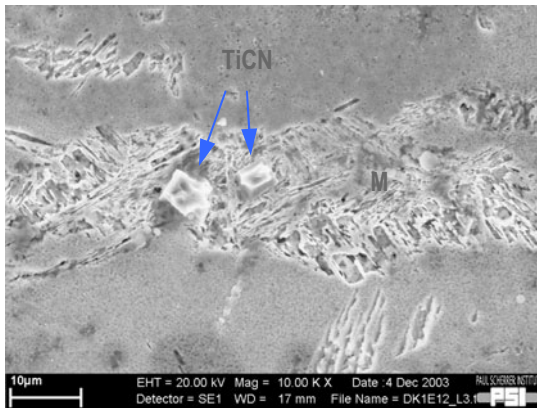


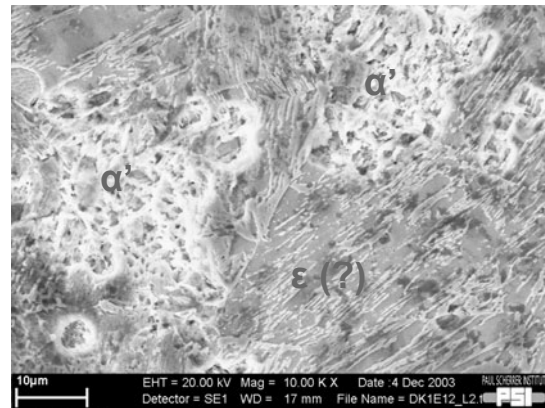
Abb.17: Die zwei möglichen Abläufe der Martensitbildung: Links: Über die Umklappung zu  $\epsilon$ -Martensit, rechts:  $\alpha'$  Martensitbildung an Gitterfehlstellen wie Gleitbänder und Mikrozwillingsgrenzen.



**Abb.18:** Variation der Martensitmenge für den Ausgangszustand und für die Ermüdungstemperaturen  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  und  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  und für die Zustände KLA und WLA..



**Abb.19:** Ermüdungsprobe 1E12, KLA, D=0.6, T=30°C, längs: Titankarbonitride (TiCN) in martensitischer Zeile (M).



**Abb.20:** Gleiche Probe wie Abb. 19: Linke Hälfte Merkmale von Lattenmartensit ( $\alpha'$ -Martensit), rechte Bildhälfte körniger Martensit, welcher auf  $\epsilon$ -Martensit hindeutet.

### 2.2.5 Zusammenfassung

- Das Plattenmaterial besitzt eine grosse Anfälligkeit gegenüber deformations-induzierter Martensitbildung, die bereits nach der mechanischen Probenpräparation deutlich wird.
- Im ermüdeten Plattenmaterial werden praktisch keine Gitterfehler wie Gleitbänder und Mikrozwillinge als Folge der plastischen Verformung beobachtet. Das gilt für beide Behandlungszustände.
- Metallografisch werden keine signifikanten qualitativen Unterschiede zwischen den Behandlungszuständen KLA und WLA festgestellt.
- Ein quantitativer Vergleich der Martensitanteile lässt sich wegen der grossen heterogenen, zeilenförmigen Verteilung nur mit sehr grossem Aufwand realisieren.
- Die Lichtmikroskopie wie auch die Rasterelektronenmikroskopie lassen keine eindeutige Differenzierung von  $\epsilon$ -Martensit und  $\alpha'$ -Martensit zu.

### 2.2.6 Schlussfolgerung

Im Stangen- und Rohrmaterial klappt der Austenit ausgehend von den Schnittstellen der Gitterfehler zu  $\alpha'$ -Martensit um. Das Plattenmaterial besitzt eine stärkere Anfälligkeit für die Martensitbildung, und zwar über die  $\epsilon$ -Martensitstufe, da

- a) die chemische Zusammensetzung der Legierung einen niedrigen Cr-Gehalt wie auch einen niedrigen Ni-Gehalt ausweist, beide nahe der unteren Grenze der entsprechenden Sollbereiche. Dadurch ergibt sich ein niedriges Cr-Äquivalent wie auch ein niedriges Ni-Äquivalent, so dass sich die Plattenlegierung im Zweiphasengebiet Austenit + Martensit befindet.
- b) sich bereits im Ausgangszustand eine grössere Martensit-Keimdichte mit einem Gehalt von 1.5 bis 3.0 Vol-% befindet.
- c) die aus der Stückanalyse errechnete Martensitbildungstemperatur ( $M_{d30} = 497 - 13.7 \cdot (\text{Cr}) - 20 \cdot (\text{Ni}) - 8.1 \cdot (\text{Mn}) - 9.2 \cdot (\text{Si}) - 462 \cdot (\text{C} + \text{N}) - 18.5 \cdot (\text{Mo})$  [8], Gehalte in Masse-%) für das Plattenmaterial höher liegt als für das Stangen- und Rohrmaterial.

$M_{d30}$  ist die Temperatur, bei welcher nach einer wahren plastischen Verformung von 30 % eine Martensitmenge von 50 % entsteht. Für das Plattenmaterial ergibt sich  $M_{d30} = 28$  °C (Stange: 4.5 °C, Rohr: - 13.7 °C).

### 2.3 BESTIMMUNG DES MARTENSITANTEILS IN DEN ERMÜDUGSPROBEN MITTELS NEUTRONENDIFFRAKTOMETRIE

Als Referenzmethode zur Bestimmung des volumetrischen Martensitanteils in den Ermüdungsproben hat sich die Neutronendiffraktometrie bewährt. Da die Umwandlung vom (kfz) Austenit zum (krz) Martensit mit einer Verzerrung des Kristallgitters verbunden ist, ändert sich nebst der Gitterstruktur auch der Gitterebenenabstand. Dies wird in Neutronenstreuexperimenten ausgenutzt, um zwischen den Phasenanteilen Austenit und Martensit zu unterscheiden. Die Streuexperimente wurden am DMC Diffraktometer an der Neutronenspallationsquelle (SINQ) des PSI in zwei Messperioden (Juli und September 2003) durchgeführt, in denen die Martensitanteile der Probensätze WLA und KLA gemessen wurden.

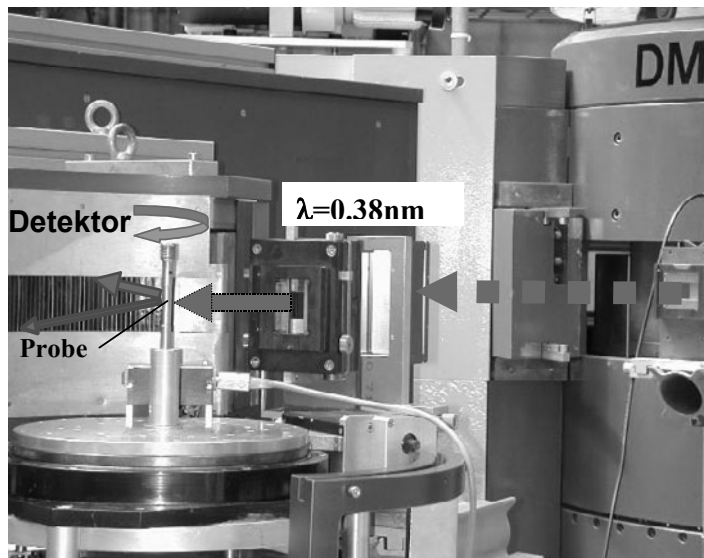


Abb. 21: Experimenteller Aufbau am DMC Diffraktometer der SINQ.

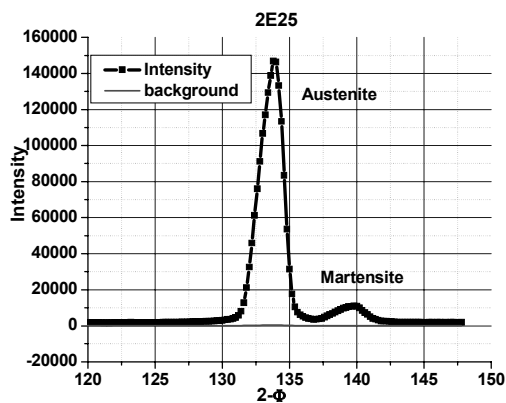


Abb. 22: Neutronenintensität als Funktion des Streuwinkels für eine WLA Probe mit wenig Martensit, Ermüdungstemperatur  $T=100^{\circ}\text{C}$ , Erschöpfungsgrad:  $D = 0.6$ , Martensit:  $MND = 5 \text{ vol-\%}$ .

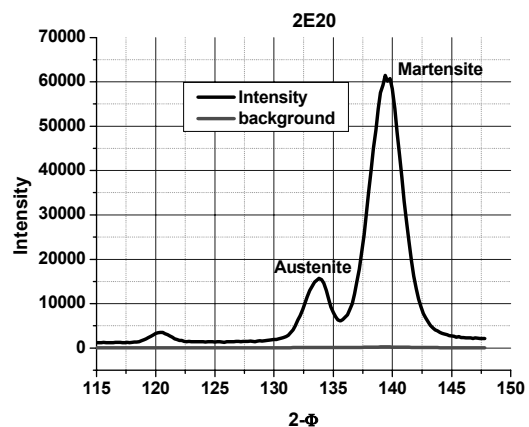


Abb. 23: Neutronenintensität als Funktion des Streuwinkels für eine WLA Probe mit viel Martensit, Ermüdungstemperatur  $T = -40^{\circ}\text{C}$ , Erschöpfungsgrad  $D = 0.6$ , Martensit:  $MND = 78 \text{ vol-\%}$ .



Die Abbildung 21 zeigt den experimentellen Aufbau am DMC. Die Proben wurden auf einen Drehtisch in senkrechter Position montiert und während der Bestrahlung mit kalten Neutronen kontinuierlich rotiert, um eine Mittelung allfälliger Inhomogenitäten zu erzielen. Die am Kristallgitter gestreuten Neutronen wurden mit einem speziellen Detektor als Funktion des Streuwinkels gezählt. Das ermittelte Spektrum besteht im Wesentlichen aus den beiden Bragg-Peaks für Austenit und Martensit. Die Abbildungen 22 und 23 zeigen beispielhaft typische Neutronenintensitäten in Abhängigkeit des Streuwinkels für Proben mit geringem und hohem Martensitanteil.

Die Martensitanteile werden aus dem Verhältnis der Flächen der beiden Bragg-Peaks berechnet. In den Abbildungen 24-27 sind die ermittelten Martensitanteile als Funktion der Temperatur und der Zyklenzahl aufgezeichnet. Mit dem Ziel, theoretische Modelle zu überprüfen, wurde bei den Untersuchungen der Temperaturbereich weit über den Betriebstemperaturbereich zu tiefen Temperaturen hin erweitert. Die Temperaturabhängigkeit der Martensitumwandlung im Bereich von  $-100\text{ °C}$  bis  $260\text{ °C}$  wurde bei beiden Probensätzen gut erfasst und entspricht dem aus theoretischen Überlegungen erwarteten Verlauf. Zur vollständigen Bestimmung der Zyklenzahlabhängigkeit der Martensitbildung sind noch weitere Messungen im unteren Zyklenzahlbereich (zwischen  $D=0$  und  $D=0.4$ ) erforderlich. Auffallend bei den aus Plattenmaterial gefertigten WLA und KLA Proben ist der sehr hohe Martensitanteil bei Raumtemperatur (über 50 vol.-%).

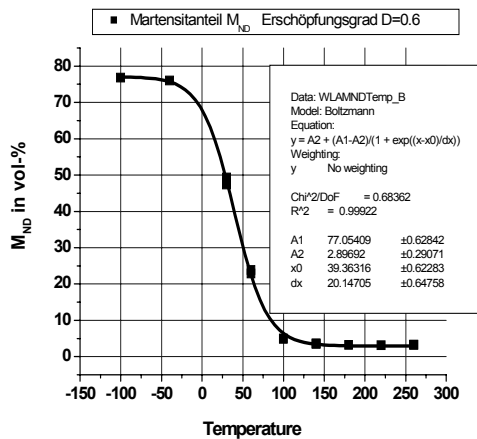


Abb. 24: Temperaturabhängigkeit, WLA

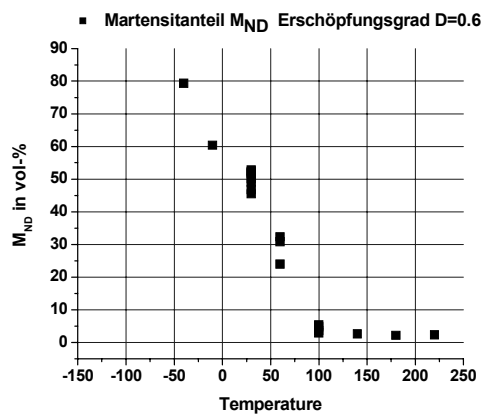


Abb. 25: Temperaturabhängigkeit, KLA

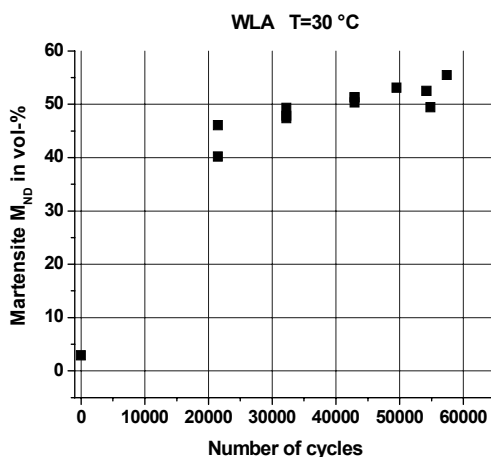


Abb. 26: Martensitanteil als Funktion der Zyklenzahl WLA, Dehnamplitude 0.3%.

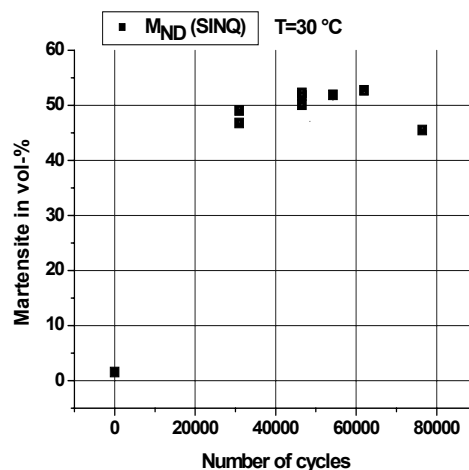


Abb. 27: Martensitanteil als Funktion der Zyklenzahl KLA, Dehnamplitude 0.3%.

## 2.4 BESTIMMUNG DES MARTENSITANTEILS IN DEN ERMÜDUNGSPROBEN MITTELS MAGNETISCHER METHODEN

Die Bildung von Martensit führt zu einer Veränderung der magnetischen Eigenschaften. Ausgehend von einer reinen Austenitmatrix, welche paramagnetisch ist, werden mit zunehmendem Martensitgehalt immer mehr ferromagnetische Anteile ins Material eingebracht, so dass vor allem die Permeabilität (d.h. die Magnetisierbarkeit) und die Remanenzfeldstärke, stark beeinflusst werden. Solche Veränderungen der magnetischen Eigenschaften können mittels diverser magnetischer Methoden gemessen werden. Im Vorprojekt FEVER wurden die Methoden der Remanenzfeldmessung mittels hochempfindlicher SQUID- und Fluxgatesensoren, die Permeabilitätsmessung mittels Ferromaster<sup>®</sup> sowie die Messung der Wirbelstromimpedanz mittels GMR-Sensoren auf ihre Anwendbarkeit hin untersucht. Dabei hat sich gezeigt, dass für den praktischen Einsatz als mobiles Prüfgerät vor allem Ferromaster<sup>®</sup> und GMR-Prüftechnik vielversprechend sind. Die beim untersuchten Plattenmaterial beobachteten hohen Martensitanteile konnten mit dem Ferromaster jedoch nicht mehr gemessen werden (da Permeabilitäten  $>2$ ), so dass in Ergänzung dazu ein ähnliches Handinstrument, ein Feritscope<sup>®</sup> MP30 der Fa. Fischer (D) eingesetzt wurde.

Beim Ferromaster wird die Permeabilität gemessen, indem ein Permanentmagnet auf das Bauteil aufgesetzt wird, welcher dieses lokal magnetisiert. Die so induzierte Magnetisierung bewirkt ein Streufeld, welches auch ausserhalb des Bauteils messbar ist. Ausgewertet wird die Änderung dieses Streufeldes. Die maximale Empfindlichkeit wird ab einer Materialdicke von ca. 10 mm erreicht.

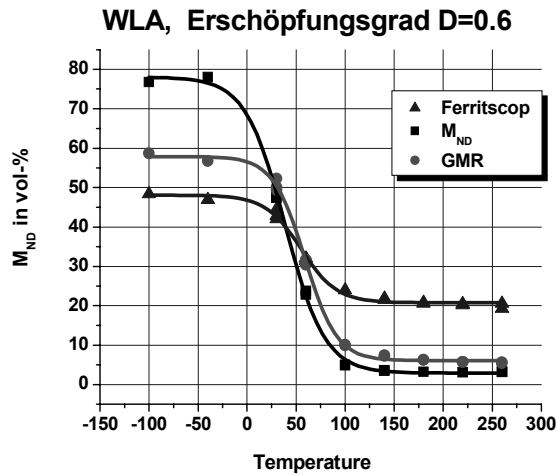
Das Feritscope misst nach der magnetinduktiven Methode. Ein von einer Spule erzeugtes niederfrequentes Magnetfeld tritt in Wechselwirkung mit den magnetischen Anteilen der Probe. Die Magnetfeldänderungen induzieren in einer zweiten Spule eine dem Ferritgehalt proportionale Spannung, die ausgewertet wird. Erfasst werden dabei alle ferromagnetischen Komponenten im sonst paramagnetischen Gefüge, d.h. neben Delta-Ferrit und anderen ferritischen Anteilen auch Verformungsmartensit. Der Hauptunterschied zum Ferromaster liegt im grösseren Messbereich und in der geringeren Eindringtiefe (ca. 3 mm).

Obwohl die Messung der Remanenzfeldstärke in Laborexperimenten weiterverfolgt wird, werden im Folgenden nur die Resultate der Messungen mittels GMR und Ferromaster resp. Feritscope mit den am DMC gemessenen Martensitanteilen verglichen. Dabei ist zu bemerken, dass es sich im Fall der Messungen mittels Feritscope um noch nicht verifizierte erste Resultate handelt. Auch wurde keine spezielle Kalibrierung dieses Sensors für Martensit vorgenommen, d.h. die angegebenen Martensitwerte basieren auf einer Kalibrierung mittels Kalibrierproben aus einem andern ferromagnetischen Material, dessen Permeabilität nicht mit derjenigen von Martensit übereinstimmen muss. Auch ein eventueller Geometrieeffekt ist bisher nicht berücksichtigt. Die mittels GMR gemessenen Martensitwerte wurden mittels einer für den ganzen Temperaturbereich erstellten linearen Regression kalibriert.

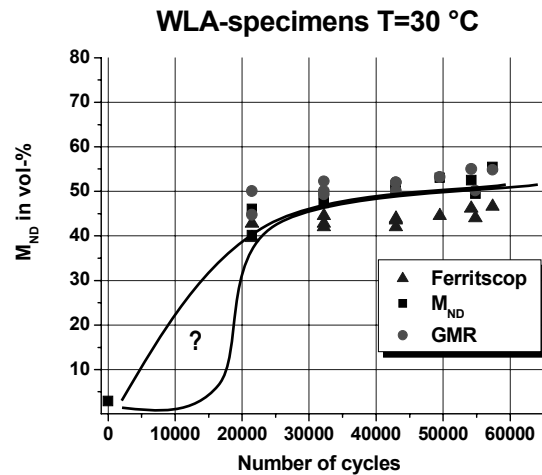
Die Abbildungen 28 und 30 zeigen den mit Neutronenstreuung ( $M_{ND}$ ), Feritscope und GMR-Messtechnik gemessenen Martensitanteil der WLA- und KLA-Proben in Volumen-% als Funktion der Ermüdungstemperatur. Es ist ersichtlich, dass die mittels Neutronendiffraktion ermittelten Werte bei tiefen Temperaturen wesentlich über denen der magnetischen Methoden liegen. Der Grund dafür ist noch nicht geklärt. Allerdings wurde eine sehr gute Korrelation zwischen den mit den verschiedenen Methoden ermittelten Martensitgehalten gefunden. Sicher wird auch eine Kalibrierung, welche die Temperatur berücksichtigt, eine Verbesserung der betragsmässigen Übereinstimmung bringen.

In den Abbildungen 29 und 31 ist der Martensitanteil für die WLA- und KLA-Proben als Funktion der Zyklenzahl aufgezeichnet. Die magnetischen Messwerte bestätigen die Ergebnisse der Neutronendiffraktions-Experimente, dass der Martensitanteil in den Ermüdungsproben mit ansteigender Zyklenzahl (Erschöpfungsgrad) kontinuierlich zunimmt. Das gilt für beide Materialausgangszustände gleichermaßen. Im Bereich des Erschöpfungsgrades von  $D=0$  bis  $D=0.4$  sollten weitere Messungen durchgeführt werden, um den Verlauf der Martensitentwicklung abzuklären.

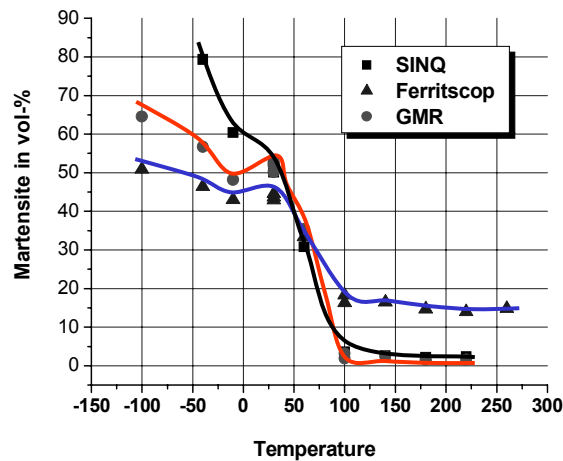
Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die mittels Neutronendiffraktometrie und magnetischen Methoden bestimmten Martensitgehalte eine sehr gute Korrelation zueinander aufweisen. Für die Ermittlung der absoluten Martensitwerte durch die verwendeten magnetischen Methoden muss jedoch die Kalibrierung der magnetischen Methoden weiter verbessert werden.



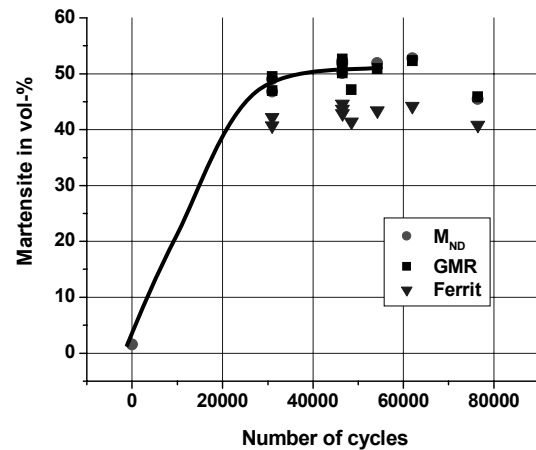
**Abb. 28:** Temperaturabhängigkeit, WLA. Die magnetischen Verfahren unterschätzen den Martensitgehalt für Ermüdungstemperaturen unter 25°C. Für  $T > 25^\circ\text{C}$  wurden die Martensitwerte überschätzt,



**Abb. 29:** Martensitanteil als Funktion der Zyklenzahl, WLA,  $T=30^\circ\text{C}$ , totale Dehnamplitude=0.3%.



**Abb. 30:** Temperaturabhängigkeit, KLA. Bei Temperaturen unter  $25^\circ\text{C}$  liefern die magnetischen Verfahren mit der verwendeten Kalibrierung im Vergleich zu denjenigen der Neutronenstreuung geringere Werte.



**Abb. 31:** Martensitanteil als Funktion der Zyklenzahl, KLA,  $T=30^\circ\text{C}$ , totale Dehnamplitude=0.3%.

## 2.5 MODELLIERUNG DER MARTENSITBILDUNG BEI THERMISCHER ERMÜDUNG

Die Bestimmung der Ermüdungsschädigung in einer Komponente aus austenitischem Stahl mit Hilfe des Effektes der deformations-induzierten Martensitbildung setzt eine eindeutige Beziehung des Volumenanteils an Martensit mit einem geeignetem Schädigungsparameter voraus. Dazu sind folgende Untersuchungen notwendig:

- Bestimmung der mikrostrukturellen und thermomechanischen Einflussgrößen, die entscheidenden Einfluss auf die Martensitbildung und den Ermüdungsverlauf haben, einschliesslich der Charakterisierung des Materialausgangszustandes,
- Bestimmung der Messfehler für diese Parameter,
- Festlegung eines geeigneten Schädigungsparameters, der in Beziehung steht mit dem Erschöpfungsgrad und dem Martensitgehalt.

Da im Kraftwerksbetrieb eine Vielzahl von thermomechanischen Lastfolgen und sehr verschiedene mikrostrukturelle Materialausgangszustände auftreten können, ermöglicht eine Ermüdungsschädigungsmodellierung eine kostengünstige Antwort auf die oben gestellten Fragen.

Das Ziel der Modellierung besteht in der Berechnung des deformations-induzierten Martensitanteils in metastabilen austenitischen Stählen bei zyklischen, thermomechanischen Belastungen und der Bezug des Martensitgehaltes auf den Erschöpfungsgrad.

Es ist vorgesehen, das Modell für bestimmte Rohrleitungsabschnitte einzusetzen, an denen eine Beanspruchung durch thermomechanische Ermüdung besteht (z.B. T-Stücke mit Mischzonen) und für die der Materialausgangszustand bekannt ist. Das Modell bestimmt zeit- und ortsabhängige Martensitanteile und definiert kritischen Bereiche, an denen eine spätere Rissbildung stattfinden kann. Die Modelle müssen Parameter sowohl für die mikrostrukturelle Charakterisierung (z.B. chem. Zusammensetzung, Gefügemerkmale) als auch für den Ermüdungsverlauf (zeitliche Verläufe von Dehnungen, Spannungen und Temperaturen, Lastfrequenz, Mittellast) berücksichtigen.

Das verwendete Modell basiert auf den kürzlich vorgestellten Arbeiten von Cherkaoui und Mitarbeitern [9]. Das Modell berechnet zunächst die Deformation und den Martensitgehalt für ein Einzelkorn eines metastabilen Stahles, das durch zeitabhängige äussere Spannungen, Dehnungen und Temperaturen beansprucht wird. Die Vorteile des Cherkaoui-Modells bestehen in der guten Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen bei statischer Belastung, in den anerkannten physikalischen Grundlagen und in der kleinen Anzahl der Modellkonstanten. Für Ermüdungsbeanspruchung wird das Modell im Projekt DIAGNOSTIK erstmalig angewendet.

Das Prinzip der Modellierung besteht darin, für die Prozesse der Plastizität und der Martensitbildung die thermodynamischen Kräfte (verbrauchte Energie bezogen auf die inneren Variablen) und die entsprechenden kritischen Kräfte, die auf die inneren Variablen wirken, herzuleiten. Die wesentlichen Annahmen des Modells bestehen in kleinen Deformationen, homogener Verteilung der Spannungen und Dehnungen im Korn, homogener Verteilung des Martensits im Korn, keiner plastische Deformation des Martensits, keiner Viskoplastizität und keiner Wärmeentwicklung durch innere Reibung.

Gleichung der Scherdehnung für die aktiven Gleitsysteme bei gegebenen  $f$ ,  $\gamma^r$ ,  $\mathbf{E}$  and  $T$

$$\sum_r (H_A + (1-f)\mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r) \dot{\gamma}^r + g\mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^{tr} f + \tau^{c_0} = \mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{E} \quad (1)$$

Gleichung für die Initiierung der Martensit-Transformation bei gegebenen  $f$ ,  $\gamma^r$ ,  $\mathbf{E}$  and  $T$

$$g \sum_r (-H_{Af} + (1-f)\mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r) \dot{\gamma}^r + (g^2 \mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \mathbf{R}^{tr} + H_f) f = g\mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \mathbf{E} - B(T - M_s) \quad (2)$$

Gleichungen für  $\dot{\gamma}^s$  und  $\dot{f}$  bei gegebenen  $T$ ,  $\dot{\mathbf{E}}$  und  $\dot{T}$  (Übereinstimmung aus (1) und (2))

$$\sum_r (H_A + (1-f)\mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r) \dot{\gamma}^r + \left( -\sum_r \mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r + g\mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^{tr} \right) \dot{f} = \mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \dot{\mathbf{E}} \quad (3)$$

$$g \sum_r (-H_{Af} + (1-f)\mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r) \dot{\gamma}^r + \left( -g \sum_r \mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \mathbf{R}^r \dot{\gamma}^r + g^2 \mathbf{R}^s : \mathbf{C} : \mathbf{R}^{tr} + H_f \right) \dot{f} = g\mathbf{R}^{tr} : \mathbf{C} : \dot{\mathbf{E}} - B\dot{T} \quad (4)$$

Gleichungen für die aktiven Gleitsysteme  $s$ :  $\mathbf{R}^s : \dot{\mathbf{\Sigma}} = H_A \sum_r \dot{\gamma}^r$  (5)

$\dot{\mathbf{\Sigma}}$  = Tensor der Spannungsrate im Korn:  $\dot{\mathbf{\Sigma}} = \mathbf{C} : \dot{\mathbf{E}}_e$  (6)

$\dot{\mathbf{E}}_e$  = Tensor der elastischen Dehnrate im Korn:  $\dot{\mathbf{E}}_e = \dot{\mathbf{E}} - (1-f) \sum_r \mathbf{R}^r \dot{\gamma}^r - g\mathbf{R}^{tr} \dot{f}$  (7)

$\gamma^s$  und  $f$  werden bestimmt durch Integration der Gln. (3) und (4)

Materialausgangszustand: plastische Scherspannung  $\gamma_0^s$ , Martensitgehalt  $f_0$

Modellkonstanten für Austenit:

$H_A$  = plast. Verfestigungskonstante

$\tau^{c_0}$  = Fließspannung

$\mathbf{R}^s$  = Schmid-Tensor für Gleitsystem  $s$

$\mathbf{C}$  = Tensor der elastischen Konstanten

Modellkonstanten für Martensit:

$H_{Af}$  = dehnungs-induzierter Martensit-Koeffizient

$H_f$  = Verfestigungskoeff. der Martensitumwandlung

$g$  = Umwandlungsdehnung

$M_s$  = Starttemperatur der Martensitumwandlung

$B$  = Chemische Energie pro Temperatureinheit

$\mathbf{R}^{tr}$  = Orientierungstensor für Martensit (Mittelwert)

Bestimmung aus Standardversuchen und Kurven-Anpassungen:  $H_{Af}$ ,  $H_f$ ,  $\mathbf{R}^{tr}$

$T$  abhängige Modellkonstanten:  $H_A$ ,  $\tau^{c_0}$ ,  $\mathbf{C}$ ,  $H_{Af}$ ,  $H_f$ ,  $B$

**Tabelle 4:** Grundlagen des Cherkaoui-Modells nach [9], Gleichungen der plastischen Scherdehnung und der Martensitbildung für ein Einzelkorn; Eingaben von  $\mathbf{E}$  = Dehnungstensor,  $T$  = Temperatur,  $\dot{\mathbf{E}}$  und  $\dot{T}$ , Dehnungs- und Temperatur-Raten; Bestimmung von  $\gamma^s$  = plastische Scherdehnung für Gleitsystem  $s$ , und  $f$  = Martensitgehalt.

Im Modell werden als Eingangsgrößen die zeitabhängigen Lastdehnungen, Spannungen und Temperaturen sowie als innere Variablen, die plastische Scherdehnung für die aktiven Gleitsysteme und der Martensitgehalt verwendet. Als thermodynamische und kritische Kräfte ergeben sich für die Plastizität die Scherspannung und die Fließ-Scherspannung sowie für den Prozess der Martensitumwandlung die Umwandlungsenergie (bestehend aus mechanischen und chemischen Anteilen) und die Bildungsenergie der Martensitkeime (bestehend aus den Anteilen Plastizität, Chemie und Keimwachstumswiderstand). Die entsprechenden Gleichungen, Konstanten und Modellierungsschritte sind in der Tabelle 4 dargestellt.

Die Gleichungen (3) und (4) stellen eine direkte Kopplung zwischen der plastischen Deformation und der Martensitumwandlung dar, deren Entwicklung von den Dehnungs- und Temperaturraten bestimmt werden. Die Linearität der Gleichungen (3) und (4) in der Raten-Form zeigt deutlich, dass die plastische Scherdehnung und der Martensitgehalt abhängen von dem Zusammenspiel der Last-Dehnung und Temperatur mit dem Prozess der Martensitumwandlung. Dieses Ergebnis lässt einen möglichen Einfluss der Martensitbildung auf die Bildung kleiner Risse im Gefüge erwarten. Die Gleichungen des Modells enthalten sowohl Parameter für die Materialcharakterisierung (Chem. Zusammensetzung, plastische Eigenschaften, Kornorientierung in Bezug zur Lastdehnungsrichtung) als auch Parameter, die die thermomechanischen Zyklen und den Materialausgangszustand bestimmen (Dehn- und Temperaturraten, Eigenspannungen, Martensit- und Deltaferritanteil im Ausgangszustand). Die Anforderungen an die Leistungsfähigkeit des Modells für die Anwendung im Projekt DIAGNOSTIK sind demnach erfüllt.

Ausgehend von den konstitutiven Gleichungen des Einzelkorns werden mit Hilfe des Hutchinson-Hill-Modells [10] die Spannungs-Dehnungs-Kurven des Polykristalls (100 Körner) berechnet. Das Einzelkorn des Polykristalls wird als ellipsoider Einschluss in einer homogenen Matrix behandelt, wobei die Matrix durch die gemittelten Werte der Eigenschaften aller Körner charakterisiert ist. Unter Nutzung der Eshelby-Modellvorstellung [10] tritt im Einzelkorn eine im Volumen konstante Reaktionsdehnung (Spannung) auf, die in Wechselwirkung mit der Dehnung (Spannung) des Polykristalls steht. Die Dehnung des Einzelkorns lässt sich in Abhängigkeit der am Polykristall angelegten Lastdehnung ausdrücken. Unter der Annahme, dass die Mittelwerte der Dehnungen und Spannungen aus allen Einzelkörnern gleich den Werten der Lastdehnung und -spannung sind, ermittelt das Modell die Spannungs-Dehnungs-Kurve für das Polykristall. Der entsprechende Martensitgehalt wird als Summe der Martensitanteile der einzelnen Körner bestimmt. Das Modell kann durch die Parameter des ellipsoiden Kornes und der Kornorientierung auch Textureffekte des Stahls in die Berechnungen einbeziehen.

Als Schädigungsparameter wird die akkumulierte plastische Dehnung verwendet. Das Modell ist in der Lage, die akkumulierte plastische Dehnung und den Martensitgehalt für beliebig gestaltete Lastfolgen zu berechnen. Für den besonderen Fall der sinus-förmigen Lastwechsel wird die Versagenszykluszahl nach dem bekannten Coffin-Manson-Gesetz bei konstanter Temperatur bestimmt. Die Modellierungsergebnisse werden schlussendlich dazu beitragen, einen Zusammenhang zwischen Martensitgehalt und Erschöpfungsgrad für thermomechanische Ermüdung zu finden.

Die Programmierarbeiten zum Modell des Einzel- und Polykristalls sind im wesentlichen abgeschlossen. Zur Zeit werden Berechnungen der Spannungs-Dehnungs-Kurven des Polykristalls für unterschiedliche Lastfolgen durchgeführt. Ergebnisse der Modellierungsarbeiten werden auf der nächsten Jahres-Projektpräsentation 2004 vorgestellt.

## 2.6 PUBLIKATIONEN 2003

### Zeitschriftenartikel:

- **D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger:** "Monitoring of Fatigue Degradation in Austenitic Stainless Steels", in "Fatigue and Durability Assessment of Materials, Components and Structures", ed. by M.R. Bache, P.A. Blackmore, J. Draper, J.H. Edwards, P. Roberts, J.R. Yates, Engineering Integrity Society, Sheffield, 2003, pp. 433-444.
- **K. Krompholz, D. Kalkhof:** "Fracture Initiation of Geometrically Scaled Notched Three-Point Bend Bars of Low-Alloy Steel", Engineering Fracture Mechanics 70 (2003) pp. 2459-2472.

### Konferenzbeiträge mit PEER-Review:

- **D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger:** "Monitoring of Fatigue Degradation in Austenitic Stainless Steels", 5<sup>th</sup> Int. Conf. on Fatigue, Queens' College Cambridge, UK, 7-9 April 2003.
- **M. Niffenegger, K. Reichlin, D. Kalkhof:** „Application of the Seebeck Effect for the Monitoring of Neutron Embrittlement and Low-Cycle Fatigue in Nuclear Reactor Technology“, 17<sup>th</sup> International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Prague, Czech Republic, 17-22 August 2003.

### Konferenzbeiträge:

- **D. Kalkhof, H.-P. Seifert, M. Niffenegger, S. Ritter:** „Massgebende Alterungsphänomene bei metallischen Werkstoffen“, SVA-Vertiefungskurs „Betriebsdauermanagement der Kernkraftwerke“, Schweizerische Vereinigung für Atomenergie Kursreferate, Bern, 2003, S. 2.1-1 bis 2.1-22.
- **D. Kalkhof:** "Materials Ageing Data available for Structural Integrity Assessment", 8<sup>th</sup> Meeting of the OECD NEA CSNI Working Sub-Group of the Integrity of Metal Components and Structures, OECD NEA CSNI, Paris, France, 14-15 April 2003.
- **D. Kalkhof:** "Material Data available for Thermal Fatigue Assessment", Project Meeting NESC-5 (EU-Network for Structural Integrity), JRC-Institute of Energy, Petten, The Netherlands, 24 September 2003.
- **M. Niffenegger:** "Results of NDT on Fatigue Specimens", Project Meeting GRETE (WP6), EDF, Les Renardières, Paris, France, 11-12 June 2003.
- **M. Niffenegger:** "Material Characterisation of Fatigue Specimens", Project Meeting GRETE (WP3), EDF, Les Renardières, Paris, France, 11-12 June 2003.

### Wissenschaftliche Berichte des PSI:

- **D. Kalkhof, M. Niffenegger und M. Grosse:** "Früherkennung von mikrostrukturellen Änderungen bei Ermüdung in nichtrostenden austenitischen Stählen", PSI Bericht Nr. 03-03, PSI Villigen, 2003.
- **M. Niffenegger, M. Grosse, D. Kalkhof, H. Leber, A. Vincent, L. Pasco, M. Morin:** "Material Characterisation of Fatigue Specimens made from Meta-stable Austenitic Stainless Steel, PSI-Report Nr. 03-17, PSI Villigen, 2003.
- **M. Niffenegger, R. Bauer, D. Kalkhof:** "Non-destructive Determination of Martensitic Content by means of Magnetic Methods", PSI-Report Nr. 03-19, PSI Villigen, 2003.
- **D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger, B. Tirbonod:** „FEVER Früherkennung von Ermüdungsschädigung an Kernkraftwerkskomponenten“, BFE-Abschlussbericht, PSI Villigen, 2003.

### 3 Nationale Zusammenarbeit

Auf nationaler Ebene findet die Zusammenarbeit und der Technologietransfer in erster Linie im unmittelbaren kerntechnischen Umfeld statt. Die Überwachungs- und Aufsichtsbehörde HSK und die Schweizer Kernkraftwerke wurden im Rahmen der HSK-PSI-Projektstatusgespräche und Halbjahressitzungen und anderer Veranstaltungen, z.B. [11], regelmässig über den aktuellen Stand der Arbeiten informiert.

### 4 Internationale Zusammenarbeit

Das Thema Werkstoffdiagnostik in der Gruppe Bauteilsicherheit ist eingebunden in europäische und bilaterale Formen der Zusammenarbeit. An den führenden internationalen Konferenzen für Ermüdung in der Kraftwerkstechnik und in der Fahrzeugindustrie wurden die Forschungsergebnisse des Projektes vorgestellt [4,5]. Weiterhin erfolgten Präsentationen von Projektergebnissen in folgenden EU-Netzwerken bzw. Arbeitsgruppen:

- EU-NESC (Network for Evaluating Steel Components),
- OECD NEA CSNI IAGE (Working Group on Integrity and Ageing of Components).

Im Rahmen des EU-Netzwerkes NESC wurde 2003 mit einem Projekt zur Erarbeitung einer Europäischen Methodologie für thermische Ermüdung begonnen (NESC-5), an dem die Gruppe Bauteilsicherheit teilnimmt. Im Mittelpunkt steht die Aufarbeitung der bisherigen Schadens-, Material- und Versuchsdaten, die Bewertung der Berechnungsmethoden und die Durchführung von speziellen Experimenten zu offenen Fragen der thermischen Ermüdungsschädigung. Die Projektpartner kommen sowohl aus der Industrie (EoN (DE), EDF (F), Framatome (F, DE), Kernkraftwerke aus S, FIN) als auch aus Forschungsinstituten (CEA (F), DNV (S), VTT (FIN)).

Eine weitere europäische Zusammenarbeit bestand in der Durchführung des EU5-Projektes GRETE (1999-2003), EURATOM Nuclear Fission, EU-Nr.: FIS5-1999-00280, BBW-Nr.: 00.0123. Das Projekt GRETE untersuchte Möglichkeiten zur zerstörungsfreien Überwachung von Materialalterung in Kernkraftwerken, insbesondere die Überwachung der Strahlungsversprödung von Reaktordruckbehältern und die Überwachung von thermischer Ermüdung in Primärkreislauf-Rohrleitungen. Folgende Projektpartner nahmen daran teil: Electricité de France (F), Nuclear Research and Consulting Group (NL), VTT Technical Research Centre (FIN), Tecnatom (SP), Fh-Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren (DE), EC Joint Research Centre Petten (EC), AEA Technology (GB), CIEMAT (SP), Forschungszentrum Seibersdorf (A), Atomic Energy Research Institute (H), Universität Hannover (DE), Nuclear Research Institute Rez (CZ), Siempelkamp (DE), Institut National des Sciences Appliquées de Lyon (F), All-Russian Institute for Nuclear Power Plants Operation (RUS), Framatome ANP (DE). Verschiedene zerstörungsfreie Prüftechniken wurden an definiert gealterten Materialproben eingesetzt. Das PSI nahm mit Untersuchungen zu den mikrostrukturellen und magnetischen Eigenschaften daran teil. Es konnte für die meisten Materialzustände bestätigt werden, dass der deformations-induzierte Martensitanteil im Austenit mit steigender Lastwechselzahl kontinuierlich zunimmt.

Bilaterale Zusammenarbeit besteht vor allem mit den Einrichtungen Forschungszentrum Jülich (DE), Siempelkamp GmbH Dresden (DE), Fh-Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren Saarbrücken (DE), Universität Hannover (DE) und Electricite de France (F).



## 5 Bewertung 2003 und Ausblick 2004

Die Zielsetzungen und Arbeitsetappen wurden für das Projektjahr 2003 vollständig erfüllt. Die Teilprogramme Wärmebehandlung und Temperatur des Plattenmaterials X6CrNiTi18-10 mit den Ausgangszuständen WLA und KLA konnten abgeschlossen werden. Der Aufbau einer Anlage zur Durchführung von thermischen Ermüdungsversuchen ist erfolgt. Die Teilprogramme Materialkennlinien Rohrmaterial und thermische Ermüdung wurden begonnen. Ein bedeutender Fortschritt konnte in der Entwicklung eines Schädigungsmodells für thermische Ermüdung unter Berücksichtigung der deformations-induzierten Martensitbildung erreicht werden. Die wichtigsten Schlussfolgerungen für das Jahr 2003 lassen sich wie folgt zusammenfassen.

Die Untersuchungen zum Einfluss des Fertigungsverfahrens und der Wärmebehandlung auf die deformations-induzierte Martensitbildung bestätigten die bisherigen Erkenntnisse (FEVER), dass der Materialausgangszustand (chemische Zusammensetzung, Mikrostruktur) eine wesentliche Rolle für die Martensitbildung spielt. Die verschiedenen Materialausgangszustände konnten gut mit den Spannungs-Dehnungs-Diagrammen aus dem Zugversuch charakterisiert werden. Für die Materialzustände WLA (warmgefertigt und lösungsgeglüht) und KLA (kaltverformt und lösungsgeglüht) von Plattenmaterial aus X6CrNiTi18-10 ergab sich überraschenderweise ein sehr hoher Martensitanteil von mehr als 50 vol.-% bei Raumtemperatur und Rissinitiierung. Verantwortlich für die starke Martensitbildung sind relativ niedrige Nickel- und Chromanteile in der Legierung sowie bereits vorhandene Deltaferrit- und Martensitanteile im Ausgangszustand. Unter diesen Material- und Lastbedingungen erlangt die deformations-induzierte Martensitbildung Bedeutung als Schädigungsmechanismus mit möglicherweise negativen Auswirkungen auf Ermüdungsfestigkeit und Spannungsrissskorrosions-Anfälligkeit.

Sowohl die Neutronendiffraktions-Experimente als auch die magnetischen Messungen ergaben, dass der Martensitanteil in den Ermüdungsproben mit ansteigender Zyklenzahl (Erschöpfungsgrad) kontinuierlich zunimmt. Das gilt für beide Materialausgangszustände gleichermaßen. Im Bereich des Erschöpfungsgrades von  $D=0$  bis  $D=0.4$  sollten weitere Messungen durchgeführt werden, um den Verlauf der Martensitentwicklung abzuklären.

Die Untersuchungen zur Temperaturabhängigkeit der Martensitbildung fanden in einem erweiterten Temperaturbereich von  $-100\text{ °C}$  bis  $260\text{ °C}$  statt. Die Beschreibung der Temperaturabhängigkeit in diesem Bereich ist von Bedeutung für die Entwicklung des Schädigungsmodells sowie zum Verständnis der Mechanismen der Martensitbildung. Für die beiden untersuchten Materialzustände ergab sich ein S-förmiger Verlauf der Temperaturabhängigkeit, der sich gut mit einer Boltzmann-Funktion beschreiben lässt. In den Temperaturkurven wurde kein wesentlicher Unterschied zwischen dem WLA- und KLA-Materialzustand festgestellt. Im Temperaturbereich, der für die thermischen Ermüdungsvorgänge in den Rohrleitungen von Interesse ist ( $60\text{ °C}$  bis  $260\text{ °C}$ ), lassen sich die Daten mit einer einfachen Exponentialfunktion fitten. Für die Anwendung der Methode müssen diese Funktionen in Abhängigkeit der Lastamplitude ermittelt werden. Nach den Neutronendiffraktions-Messungen wurde der Martensitgehalt auch mit ausgewählten magnetischen Methoden bestimmt (Feritscope<sup>®</sup> und GMR-Messtechnik). Generell konnten gute Korrelationen zwischen den mit den verschiedenen Methoden ermittelten Martensitgehalten gefunden werden. Für die hohen Martensitanteile bei tiefen Temperaturen wurde jedoch ersichtlich, dass die mittels Neutronendiffraktion ermittelten Werte wesentlich über denen der Feritscope<sup>®</sup>-Messung lagen. Es sollte überprüft werden, ob eine temperaturabhängige Kalibrierung des Feritscope<sup>®</sup>-Messgerätes eine Annäherung der Ergebnisse bringt.

Das wesentliche Untersuchungsmaterial für das Projekt DIAGNOSTIK stellt der Original-Rohrleitungswerkstoff X6CrNiTi18-10 dar, der aus einer nicht installierten Volumenausgleichsleitung eines Kernkraftwerkes stammt. Für dieses Material erfolgt im Jahre 2004 eine umfassende Bestimmung der Materialkennlinien unter den bisher bekannten Einflussgrößen. Folgende Materialkennlinien werden ermittelt:

- Martensitgehalt in Abhängigkeit der Lastwechselzahl (Erschöpfungsgrad) für unterschiedliche Dehnungsamplituden und Mitteldehnungen,
- Martensitgehalt in Abhängigkeit der Temperatur für unterschiedliche Dehnungsamplituden

Die bisher mit dem Original-Rohrleitungsmaterial durchgeführten Ermüdungsversuche weisen darauf hin, dass sich der Martensitgehalt wesentlich von den Proben des Plattenmaterials unterscheiden wird. Eine wesentlich geringere Martensitbildungs-Anfälligkeit ist auch aus der Analyse des Materialausgangszustands abzuleiten (Schäffler-Diagramm).

In Verbindung mit den Ermüdungsversuchen des Rohrmaterials werden die Mikrostrukturen der deformations-induzierten Martensitbildung mittels metallographischen Methoden und Rasterelektronenmikroskopie und der Volumenanteil an Martensit mittels Neutronendiffraktometrie bestimmt. Hierbei werden auch weitere Erkenntnisse zu den Bildungsmechanismen erwartet. Bisher werden zwei mögliche Abläufe der Martensitbildung angenommen. Für das Plattenmaterial ist die Bildung des  $\alpha'$ -Martensits über die Zwischenstufe des  $\epsilon$ -Martensits wahrscheinlich. Im Rohrmaterial könnte der  $\alpha'$ -Martensit direkt ohne die Zwischenstufe entstehen.

In Ergänzung der Ermüdungsbeanspruchung des Rohrmaterials durch mechanische Lastfolgen werden thermische Ermüdungsversuche durchgeführt. Hierbei werden die Untersuchungsproben mit Temperaturzyklen belastet, teilweise in Kombination mit mechanischer zyklischer Beanspruchung. Es wird überprüft, ob sich Martensitgehalt und Bildungsmechanismus für rein mechanische Ermüdung und thermischen Ermüdung unterscheiden bei vergleichbaren Dehnungsamplituden.

Die Entwicklung des Schädigungsmodells für Ermüdung unter Berücksichtigung der deformations-induzierten Martensitbildung bei variablen mechanischen und thermischen Lastfolgen wird im nächsten Jahr abgeschlossen sein. Eine Verifizierung des Modells mit speziellen Experimenten ist vorgesehen. Bei erfolgreicher Verifizierung kann das Schädigungsmodell wesentlich mithelfen bei der Abklärung, unter welchen Material- und Lastbedingungen die Methode der Früherkennung von Ermüdungsschädigung eingesetzt werden kann.

## 6 Referenzen

- [1] D. Kalkhof, M. Niffenegger und M. Grosse: **Früherkennung von mikrostrukturellen Änderungen bei Ermüdung in nichtrostenden austenitischen Stählen**, PSI Bericht Nr. 03-03, Villigen PSI, 2003.
- [2] D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger, D. Stegemann, W. Weber: **Microstructural Investigations and Monitoring of Degradation of LCF Damage in Austenitic Steel X6CrNiTi18-10**, Proceedings of the 1<sup>st</sup> Int. Conf. on Fatigue of Reactor Components, Napa, USA, July 31 – August 2, 2000, EPRI 1006070 (2001).
- [3] M. Grosse, M. Niffenegger, D. Kalkhof: **Monitoring of Low-Cycle Fatigue Degradation in X6CrNiTi18-10 Austenitic Stainless Steel**, J. of Nuclear Materials 296 (2001) 305.
- [4] D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger: **Monitoring of Fatigue Degradation in Austenitic Stainless Steels**, 2<sup>nd</sup> Int. Conf. on Fatigue of Reactor Components, Snowbird, USA, 29-31 July 2002.
- [5] D. Kalkhof, M. Grosse, M. Niffenegger: **Monitoring of Fatigue Degradation in Austenitic Stainless Steels**, Int. Conf. on Fatigue and Durability Assessment of Materials, Components and Structures, Queens' College Cambridge, UK, 7-9 April 2003.
- [6] **Avesta Sheffield Information 10100GB**, Avesta Sheffield AB, R & D, SE-774 80 Avesta, 2000, 7.
- [7] O. Grässel et al.: **High Strength Fe-Mn-(Al, Si) TRIP/TWIP steels development – properties – application**, International Journal of Plasticity 16 (2000), 1391–1409.
- [8] J. C. Bavay: **Aciers inoxydables austénitiques**, Les aciers inoxydables, Les éditions de physique, F- 91944 Les Ulis Cedex A, 1990, 579.
- [9] M. Cherkaoui, M. Berveiller, X. Lemoine: **Couplings between Plasticity and Martensitic Phase Transformation: Overall Behavior of Polycrystalline TRIP Steels**, International Journal of Plasticity, 16 (2000) 1215-1241.
- [10] J. W. Hutchinson: **Proceedings of the Royal Society of London**, A319 (1970) 247-272.
- [11] D. Kalkhof, H.-P. Seifert, M. Niffenegger, S. Ritter: **Massgebende Alterungsphänomene bei metallischen Werkstoffen**, SVA-Vertiefungskurs „Betriebsdauermanagement der Kernkraftwerke“, 27./28. November 2003, Winterthur, Schweizerische Vereinigung für Atomenergie Kursreferate, Bern, 2003, S. 2.1-1 bis 2.1-22.



Datum: 09.01.2004

Von: D. Loy, A. Badur

## **Begutachtung 2003 für das Projekt STARS-IV**

### **Einleitung**

Mit dem Abschluss eines Anschlussvertrages über die Sicherheitsforschung für Transientenanalysen der Reaktoren in der Schweiz (STARS) wurde Ende 2001 der vierte STARS-Vertrag (STARS-IV) vom Bundesamt für Energie (BFE), vertreten durch die HSK, und dem Paul Scherrer Institut (PSI) unterzeichnet. Der neue Auftrag des STARS-Vertrags fordert, die Schwerpunkte von der Entwicklung von Anlagemodellen und der Code-Implementation auf Aspekte des Systemverhaltens zu verschieben. Des Weiteren fordert der Vertrag Entwicklungs- und Forschungsarbeiten im Zusammenhang mit neuen Anforderungen für den Nachweis der Sicherheit der KKW's bei Störfällen mit hochabgebrannten Brennstäben und die Weiterentwicklung der Methodik zur Bestimmung der Rechenunsicherheit. Zudem sind die internationale Zusammenarbeit zur besseren Nutzung von Ressourcen sowie der fachliche Erfahrungsaustausch durch das Projekt zu stimulieren.

Das STARS-Projekt steht unter der Projektleitung von Herrn Martin A. Zimmermann und wird innerhalb des Labors für Reaktorphysik und Systemverhalten (LRS) im Forschungsbereich NES am PSI abgewickelt. Zwischen dem PSI - Projektteam und der HSK besteht eine gute und intensive Kommunikation. Diese basiert nicht zuletzt auf der Zusammenarbeit im Rahmen von sog. 'On-Call' – Arbeiten (Analysen im Auftrag der HSK zu aktuellen Themen, die über einen separaten Vertrag verrechnet werden). Es finden vierteljährlich Statusgespräche statt, bei denen die erzielten Fortschritte und das weitere Vorgehen besprochen werden.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Im Rahmen des STARS-Vertrags ist von der STARS-Gruppe das „Know how“ zur Durchführung von Forschungsarbeiten und Analysen im Bereich der deterministischen Störfallanalysen für die HSK oder ggf. auch für die Schweizer Kernkraftwerke bereitzustellen. Dazu werden zur Simulation des Brennstoff-, Kern- und Anlagenverhaltens die Rechencodes CASMO-4, SIMULATE-3, RETRAN-3D, CORETRAN, RAMONA, RELAP5/MOD3, TRAC-BF1, TRANSURANUS und FREY angewandt. Mit den 2003 durchgeführten Arbeiten für die HSK und die Anlagen sowie den Forschungsarbeiten, bei denen diese Rechencodes Anwendung fanden, wurde dieses Projektziel vollumfänglich erreicht.

Darüber hinaus wurden zum Erreichen weiterer Projektziele von der STARS-Gruppe für das Jahr 2003 geplant, folgende Arbeiten durchzuführen:

- Das elektronische Archiv STARSBase ist operationell
- Das Qualitätsmanagementsystem (QMS) ist zertifiziert
- Das Verständnis des transienten Brennstabverhaltens hochabgebrannter Brennstäbe während RIA und LOCA wird durch Analyse von ausgewählten CABRI- und Halden-Experimenten vertieft
- Mit der Analyse von Transienten bei geringer Leistung und niedrigem Druck (z.B. Nachrechnung eines PKL-Tests) wird begonnen

- Die Forschungsarbeiten zur Abschätzung der Rechenunsicherheit bei der Berechnung von reaktorphysikalischen Problemen wird fortgeführt
- Die Untersuchungen zum internationalen Programm über Stabilitätsuntersuchungen NACUSP werden abgeschlossen und ein zusammenfassender Bericht wird erstellt
- Die VENUS-Benchmarks werden als erster Schritt des Aufbaus von auf der Monte-Carlo-Methode basierten Fluenzrechnung analysiert
- Die Anwendung von Computational Fluid Dynamic (CFD)-Programmen für reaktortypische Geometrien wird validiert

Das elektronische Archiv zur Dokumentation der durchgeführten Arbeiten wurde im Berichtsjahr in Betrieb genommen. Es erlaubt unter anderem die systematische Ablage technischer Berichte und der zugehörigen Eingabedatensätze der diversen Programme, die bei der Bearbeitung verwendet wurden. Dieses Tool gewährleistet die Suche und den schnellen Zugriff auf die qualitätsgesicherte Dokumentation der durchgeführten Arbeiten. Da die HSK im Rahmen von On-Calls zu aktuellen sicherheitstechnischen Fragestellungen aus dem kerntechnischen Bereich von der STARS-Gruppe Expertisen erhält, kommt der Dokumentation und Nachvollziehbarkeit dieser Arbeiten eine besondere Bedeutung zu.

Das Ziel des Aufbaus und der Zertifizierung eines Qualitäts-Managementsystems konnte im Berichtszeitraum nicht erreicht werden. Verursacht wurde die Verzögerung zum grossen Teil durch die verspätete Inbetriebnahme des elektronischen Archivs, das ein wesentlicher Bestandteil des zukünftigen Qualitäts-Managementsystems bilden soll. Das STARS-Projekt hat jedoch zielführend auf die Verzögerung reagiert und einen externen Berater beigezogen. Die revidierte Planung geht nun von einer Einführung und Zertifizierung des Qualitäts-Managementsystems für das Jahr 2004 aus.

Die HSK wird demnächst die Grenzwerte für die zulässige Energiefreisetzung im Brennstoff bei einem plötzlichen Reaktivitätsanstieg (RIA = Reactivity Initiated Accidents) dem aktuellen Wissensstand anpassen. Vergleichbare Aktivitäten werden zurzeit auch von ausländischen Aufsichtsbehörden (US-NRC/EPRI) verfolgt. Einen wesentlichen Beitrag zu diesem Vorhaben bildeten die Arbeiten der STARS-Gruppe mit den Nachrechnungen zu den CABRI-Versuchen, bei denen Brennstäbe mit hohem Abbrand einer plötzlichen Reaktivitätszufuhr (RIA) ausgesetzt wurden. Im Rahmen der Analysen zum Brennstoffverhalten, wobei auch MOX-Brennstoff enthalten war, wurden von der STARS-Gruppe die Programme FREY, CASMO/SIMULATE und CORETRAN eingesetzt, die den Stand Wissenschaft und Technik repräsentieren.

Im Bereich der Kühlmittelverluststörfälle wurde das Haldenexperiment IFA-650 mit vorbereitet, wozu mit dem Systemcode TRAC-BF1 ein Rechenmodell erfolgreich erstellt wurde. Zusätzlich wurde erstmals der neue Systemcode der US-NRC TRACE von der STARS-Gruppe zur Nachrechnung eines LOFT-Versuchs anstatt, wie geplant eines PKL-Versuchs, eingesetzt. Mit dem Einsatz von TRACE stellt die STARS-Gruppe sicher, dass moderne Programmsysteme auch weiterhin für Analysen zur Verfügung stehen.

Zur Quantifizierung der Rechenunsicherheit wurde im Berichtszeitraum mit der statistischen Software SUSE die Unsicherheit der Isotopenverteilung in Abhängigkeit vom Abbrand bestimmt und mit Versuchsergebnissen aus dem ARIANE Programm verglichen. Diese Forschungsarbeit stellt sicher, dass in der STARS-Gruppe auf diesem Gebiet rechtzeitig "know how" gebildet wird. Die HSK verlangt, dass bei der Verwendung von "Best-Estimate"-Methoden für rechnerische Nachweise die Unsicherheiten der Rechenergebnisse quantitativ ausgewiesen werden. Die Untersuchungen und Beiträge der STARS-Gruppe zum NACUSP-Programm wurden im Berichtszeitraum abgeschlossen. Ein übergeordneter Bericht wird ausserhalb von STARS im Rahmen des Work Package 4 noch erstellt.

Stand der Wissenschaft ist es, in Bereichen in denen keine Versuche zur Verfügung stehen, oder in denen Versuche zu kostenintensiv sind, zur Validierung von Rechenprogrammen theoretisch stringente Referenzmethoden einzusetzen. Das Monte-Carlo Programm MCNPX für Neutronik-Rechnungen und dessen Erweiterung MONTEBURNS für Abbrandrechnungen wurden im letzten

Jahr erfolgreich auf einem Parallelrechner des PSI installiert. Die Nachrechnung des VEBUS-1 Experiments wurde erfolgreich durchgeführt. Abbrandrechnungen mit MONTEBURNS bestätigten die gute Übereinstimmung mit Versuchsergebnissen aus dem ARIANE Programm. Die Anwendung dieser Methoden erlaubt in Einzelfällen sicherheitstechnisch kritische Aussagen durch theoretisch stringente Referenzmethoden zusätzlich abzustützen.

Weiterhin wird im Rahmen des Projektes STARS unter Anwendung der neutronenphysikalischen Rechenprogramme und teilweise auch in Verbindung mit den thermohydraulischen Rechenprogrammen ein Core Management System (CMSYS) genutzt und weiterentwickelt. Dieses System erlaubt den Zugriff auf zentral verwaltete und qualitätsgesicherte Daten der Schweizer Reaktoren. Es garantiert damit einen hohen Stand der Qualitätssicherung der Ergebnisse und eine effiziente Arbeitsumgebung der STARS-Gruppe. Die HSK erwartet, dass die von der HSK an die STARS-Gruppe in Auftrag gegebenen Bewertungen zu speziellen Fragestellungen (On Calls) belastbar und fehlerfrei sind. Die HSK betrachtet das CMSYS als ein notwendiges Tool, um richtige Eingabedaten bei der Nutzung von Rechenprogrammen zur Verfügung zu haben.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Der Auftrag des STARS-Vertrags gewährleistet, dass am Paul Scherrer Institut (PSI) eine Gruppe von Experten mit adäquaten Rechenprogrammen zur Unterstützung der HSK vorhanden ist, die deterministische Störfallanalysen zur Überprüfung des Brennstoff- und Anlageverhaltens für alle schweizerischen Kernkraftwerke durchführen kann. Zudem kann die Expertengruppe zu sicherheits-technischen Fragestellungen aus Teilbereichen der Kerntechnik Expertisen erstellen, die auf dem Stand von Wissenschaft und Technik basieren. Der im STARS-Vertrag beinhaltete Forschungsauftrag gibt der STARS-Gruppe die notwendige Freiheit, das Wissen der Gruppe auf eine breite Basis zu stellen.

Durch die Bearbeitung von On-Calls, mit denen die HSK die STARS-Gruppe beauftragt hat, entspricht der Notwendigkeit, ein derartiges Wissen für die Aufsichtsbehörde abrufbar zu haben. Auch die Aufträge von den Kernkraftwerken der letzten Jahre haben gezeigt, dass neben sicherheitstechnischen Fragestellungen auch Anlagenänderungen und Tests durch die STARS-Gruppe unterstützt werden konnten. Die inhaltliche Ausrichtung der Tätigkeiten der STARS-Gruppe wird durch das Labor-Beratungs Komitee (SAC, Scientific Advisory Committee) beurteilt, das sich aus internationalen Experten aus dem Gebiet der Kerntechnik zusammensetzt. Das Komitee, in dem die HSK vertreten ist, tagt jährlich einmal.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Der STARS IV Vertrag läuft bis zum 31.12.2004. Für eine Verlängerung des STARS-Vertrags müssen im Jahr 2004 eine Reihe von Vorbereitungsarbeiten durchgeführt werden. Das PSI wird einen Vorschlag für eine Fortsetzung des Vertrages machen, der anschliessend von den beteiligten Gruppen beurteilt wird. Es handelt sich dabei um die Swiss Nuclear (Überlandwerke, Ausschuss Kernenergie), das PSI und die HSK. Das Labor-Advisory Komitee tagt zwar bereits im März, soll aber so weit wie möglich mit einbezogen werden.

# Projekt

## Sicherheitsforschung bezüglich Transienten -analyse der Reaktoren in der Schweiz (STARS)

Autor und Koautoren	Rafael Macian, Martin A. Zimmermann
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 27 33, <a href="mailto:Martin.Zimmermann@psi.ch">Martin.Zimmermann@psi.ch</a> <a href="http://stars.web.psi.ch">http://stars.web.psi.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	61500
Dauer des Projekts (von – bis)	1. 1. 2001 – 31. 12. 2004

### SUMMARY

Mit der erstmaligen Anwendung der Methodik für die Ermittlung des Einflusses von Parameterunsicherheiten auf ein Problem der Reaktorphysik (isotopische Zusammensetzung einer Brennstabprobe mit Abbrand von ~60 GWd/t) wurde ein wichtiges Ergebnis erzielt: Die Auswirkungen von Parameterunsicherheiten können für wichtige Resultate von neutronischen Rechnungen systematisch und quantitativ erfaßt werden; dabei lassen sich gleichzeitig die wichtigsten Sensitivitäten feststellen.

Auf dem Weg zur einer Monte-Carlo basierten Fluenzrechnung wurden weitere Fortschritte erzielt: Unter Einsatz von modernen Varianzreduktionsmethoden wurde ein VENUS-1 Benchmark nachgerechnet. Weil vergleichsweise nur wenige Messungen in den peripheren Reaktorstrukturen gemacht wurden, wurde zur weiteren Bestätigung der Rechenmethodik die Verfolgung eines gegenwärtig aktiven Benchmarks des OECD/NSC begonnen, der 3-D-Messungen in den Reaktorstrukturen anbietet.

Die transiente Brennstabanalyse konnte für RIA anhand von ausgewählten Experimenten des CABRI-Programmes vertieft werden, und bei der Nachrechnung eines MOX-Brennstabes konnte eine gute Übereinstimmung mit der gemessenen Spaltgasfreisetzung erzielt werden.

Mit der frühzeitigen Beteiligung an der Validierung von TRACE konnten detaillierte Kenntnisse über den Anwendungsbereich und die Möglichkeiten dieses neuen Rechenprogrammes für DWR und SWR Systemtransienten (inkl. LOCA) gewonnen werden. Ein Teil dieser Arbeit erfolgt im Rahmen des CSNI-GAMA Arbeitsprogrammes BEMUSE, das nach der Nachrechnung eines LOFT-Experimentes auch den Vergleich mit den verschiedenen Teilnehmern angewandten Methodiken zur Abschätzung der Rechenunsicherheit erlauben wird. Dies wird eine Weiterentwicklung der STARS Unsicherheitsanalyse für thermohydraulische Probleme ermöglichen.

## Project Objectives

The project STARS (*Sicherheitsforschung bezüglich Transientenanalyse der Reaktoren in der Schweiz*) has the following general objectives:

- To establish and maintain a broad expertise basis and competence for the realization of deterministic safety analysis in the important areas of neutronics, thermo-hydraulics, nuclear fuels, and nuclear systems behavior.
- To achieve a high technical standard in the methods for the analysis of transients in reactors and nuclear facilities (excluding severe accidents) based on state-of-the-art research and development.

In order to fulfill these objectives, the project encompasses three areas of activity:

- Modeling and Validation,
- Scientific Services,
- Research and Development.

Modeling and validation form the basis of the scientific services provided by STARS to the Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) and to the Swiss Nuclear Power Plants (NPPs). These services are carried out with state-of-the-art calculational methods and computer codes which are improved, developed, and maintained as advanced tools through the STARS research activities. Research is also important because it offers the members of the project the possibility of engaging in interesting and challenging areas of study related to nuclear engineering and safety, thus contributing to expanding and advancing their know-how and skills, which will then be applied to the other areas of activity of the project. Research work is carried out by STARS members directly or through doctoral work ascribed to the EPFL in those topics relevant to the overall objectives of the project.

In addition to performing maintenance of the neutronic and thermal-hydraulic nuclear plant models and of the computer codes used for the analyses and research, the project set the following objectives for 2003:

- Implementation and operation of the electronic archive STARSBase.
- Certification of the Quality Management System.
- Increase the understanding of the transient behavior of high burn-up fuel elements during reactivity initiated accident (RIA) and loss-of-coolant-accident (LOCA) through the analysis of selected experiments from the CABRI and HALDEN experimental facilities.
- Begin of the analysis of low power and pressure transients (one of the PKL Tests as a possible choice to start this activity)
- Continuation of the research work on uncertainty in the calculation of physics reactor problems.
- Conclusion of the research activities in the framework of the international project NACUSP (EU 5<sup>th</sup> FW) and preparation of a final summary report.
- Analysis of the VENUS-benchmarks as a first step in the development of Monte-Carlo based neutron fluence calculations.
- Validation and use Computational Fluid Dynamics for geometries typical of nuclear reactors.

## Work Performed and Results

The activities in STARS during 2003 have encompassed a wide range of areas in nuclear safety and engineering. They include fuel behavior analysis, static and dynamic core physics applica-



tions, neutron transport calculations based on Monte-Carlo methods, research and development of methods and applications for uncertainty calculation in thermal-hydraulics and neutronics, and studies of NPP transients with thermal-hydraulic and neutronic methods. This section offers a summary of the main activities in these areas and the most relevant results obtained during 2003.

## FUEL BEHAVIOR ANALYSIS OF CABRI RIA-EXPERIMENTS

Nuclear fuel analysis activities in STARS in 2003 focused on the analysis of the behavior of high burn-up fuel during a RIA in which the rod power can reach 500 to 1000 times the nominal value during steady-state operation. NRC Regulations (Reg. Guide 1.77) establish a safety limit to be satisfied for the peak cross sectional average enthalpy of fuel, which must not exceed 280 cal/g. At the time when the enthalpy limit of 280 cal/g was set, most of the data available was for low burn-up fuel, and only four fuel tests related to RIA issues had been performed above 6 GWd/tM. Since then, some RIA tests beyond the burn-up of 60 GWd/tM (e.g. tests within the CABRI program) identified failures at low enthalpy levels, which called into question the appropriateness of the enthalpy limit of 280 cal/g.

In order to obtain insight into the adequacy of the computational tools and methods currently used in STARS for the analysis of high burn-up fuel, the calculations of the CABRI tests REP-2, REP-4 and REP-5 was performed with the fuel code with the objective of understanding the physics of the basic phenomena involved in RIA, studying the applicability of the special conditions in the CABRI tests to the fuel in a standard nuclear power plant, and providing scientific support in decision making concerning the "Swiss Curve". Figure 1, shows a comparison of the results for the radial temperature profiles obtained from FREY for each of the CABRI experiments analyzed. The high temperatures reached in the rim zone for REP-2 and REP 5 (both with very short pulses) are noteworthy.

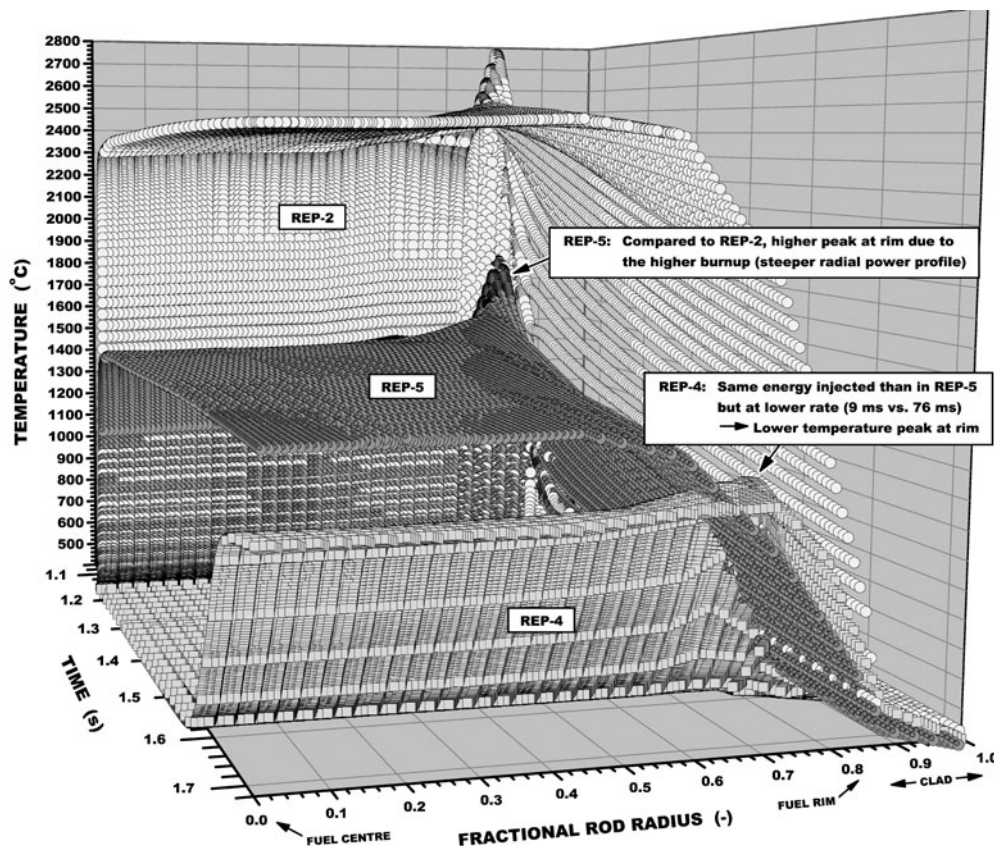
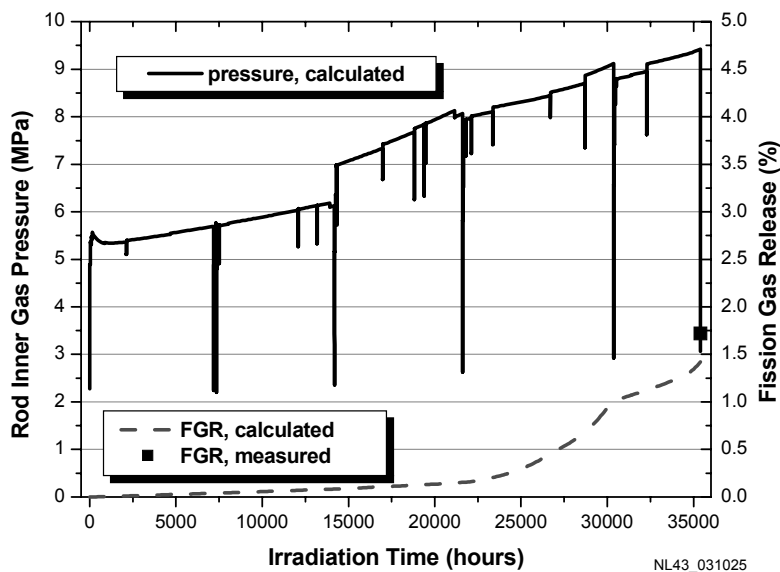


Figure 1: CABRI tests REP-2, REP-4, REP-5: Radial temperature profile versus time (FREY).

## FUEL PERFORMANCE ANALYSIS FOR MOX-FUEL

The fuel performance analysis included the modeling of two rods from a PWR with the fuel analysis code TRANSURANUS. The fuel centre temperature and fission gas release data were obtained from an international research programme that provided detailed knowledge on the performance of mixed-oxide (MOX) fuel irradiated to high burn-up levels. PSI was one of the participating members. Two full-length MOX fuel rods were base irradiated in a PWR over five operating cycles at moderate power achieving a peak pellet burn-up of up to approximately 50 MWd/kgHM. Subsequently, the non-destructive Post Irradiation Examination was performed in the PSI Hot Laboratory. The fission gas release predicted with TRANSURANUS compares well with the measured fission gas release (FGR) data (see Figure 2). The new version of TRANSURANUS with special MOX-related new models, that was made available to PSI by September 2003, improved



significantly the quality of the prediction.

Figure 2: Test Rod inner pressure and integral fractional fission gas release. This figure shows the good comparison of the fission gas release fraction predicted by the TRANSURANUS code with the measurement (dark square) at the end of the irradiation (35'000 h).

## CORE MANAGEMENT SYSTEM CMSYS

Within the technical area of core physics and dynamics, the work carried out during year 2003 addressed the following topics: Consolidation of the CMSYS code environment, improvement and assessment of core physics models for the steady-state analysis of Swiss reactors, dynamical analysis of the stability experiments carried out at beginning-of-cycle 19 (BOC19) in the Leibstadt NPP (KKL), investigations of Reactivity-Initiated-Accidents applied to Swiss reactors and finally, participation in two international programmes, including the European NACUSP project for BWR stability and the OECD/NRC benchmark on Rod-Ejection-Accidents for MOX cores.

The main objective of the CMSYS system (Core Management System at PSI) is to provide to the STARS project a centralized, highly reliable reactor physics environment for the development, the storage and the assessment of qualified reference deterministic steady-state models of all Swiss

nuclear reactors. This system must ensure re-traceability, quality, security and efficiency. During 2003, a consolidation phase of CMSYS has been initiated and, in parallel, the capabilities of CMSYS have been extended for transient applications. The consolidation has improved the computational modules that control the calculational procedures and the data flow within the code environment in order to increase their efficiency and to develop and integrate within these modules the required QA-procedures to ensure security and re-traceability in the data flow and storage. As a first step, a new computational module for managing SIMULATE-3 core static simulations has been developed and is currently being implemented within CMSYS.

Also a part of the consolidation phase, the review, assessment and documentation of the currently available CMSYS models has been started for Mühleberg NPP (KKM). This has included a thorough review of all data used for the KKM CMSYS model including all fuel and core models of cycles 19 to 28, and core follow calculations, as well as comparisons with measurements for all these cycles using two distinct neutron data libraries. The assessment shows that for all cycles, a very satisfactory agreement with the measurements is obtained with regard to the predicted 3-D power distributions, indicating that the CMSYS methods and procedures to perform KKM steady-state core simulations for normal reactor operation can be considered as validated and adequate. Similarly, a preliminary consolidation of the CMSYS model of NPP Beznau I (KKB-I) was also performed. It consisted mainly in comparing SIMULATE-3 results with measured data for several cycles and operating conditions, and confirmed that a very good accuracy could be achieved in predicting both the core critical boron concentration as well as 3-D neutron flux distributions.

During 2003, CMSYS has also been extended to serve as basis for the preparation of core data necessary for the transient (kinetic) analysis of the Swiss plants. The objective is to develop and integrate computational modules aimed at serving as interfaces between the QA-core static models of CMSYS and the transient computation codes. This is to allow for a full consistency with regard to the core modeling between the steady-state and the transient analyses to be performed at PSI for the Swiss plants. As a first step, a computational module for the automatic setting-up of RAMONA-3 neutron data libraries using as starting point CMSYS fuel lattice models, was developed and integrated, allowing for a considerably more efficient data transfer combined with a minimized risk for human-induced errors (that could result due to the cumbersome nature of this type of data transfer).

### **3D-KINETICS ANALYSIS OF BWR RIA SCENARIOS**

Work on core dynamics has involved the post-test analysis of stability experiments which were carried out in KKL at BOC 19 (September 2002). The analysis included, in a first part, a time-series analysis of measured reactor noise signals to estimate the experimentally measured Decay Ratio (DR) and in a second part, a dynamical analysis using the RAMONA-3 kinetic code to calculate the DRs. The objective was twofold: first, to show that the core remained stable ( $DR < 1.0$ ) during all tests and secondly, to validate the PSI RAMONA-3 stability analysis methodology. Taking into account typical uncertainties for measured and calculated decay ratios, the predicted decay ratios compare well with the measured data. It is worthwhile to indicate that the methodology to set-up the RAMONA-3 core model was considerably upgraded in the course of this work, including a modified thermal-hydraulic model and the use of CMSYS to develop the nuclear data libraries.

RIA safety analyses investigations were also carried out regarding the establishment of new acceptance criteria for the maximum allowed enthalpy following a postulated RIA in a BWR- or a PWR UO<sub>2</sub> core at Hot-Zero-Power (HZP), which are currently being developed within an NRC/EPRI programme. The investigation addresses two main questions. First, it was considered necessary to examine if a more severe transient could occur for BWRs at intermediate low power levels (1% to 5% power) compared to HZP because of the initially larger fuel pellet enthalpy. Analyses were therefore performed using the CORETRAN neutron kinetics code, which is based on a three-dimensional (3-D) nodal diffusion method in 2 (neutron) energy groups, and showed that although the initial enthalpy would indeed be smaller at HZP conditions compared to intermediate power levels, the maximum reached enthalpy following a transient would nevertheless re-

main by far largest at HZP. This confirms that the assumption of HZP conditions for the safety analysis of BWR RIAs is a conservative one and hence adequate. A second investigation was carried out in order to study the range of variation of the power pulse width following a RIA in a PWR at HZP. The reason is that the pulse width can be seen as an indicator for the severity of the RIA: the lower the pulse width, the larger the enthalpy release. For the development of the NRC/EPRI acceptance criteria mentioned above, pulse widths above 20 ms were assumed in the fuel analysis. However, since these criteria were developed for UO<sub>2</sub> cores while MOX cores are also operated in Switzerland, it was considered necessary to verify if the assumption of pulse widths wider than 20 ms is also valid for MOX cores. Therefore, CORETRAN 3-D kinetic analyses were performed at PSI for different real PWR cores (based on CMSYS data) including one pure UO<sub>2</sub> cycle and three MOX cycles. The results of these investigations show that although the pulse width is generally smaller for the MOX cores, the differences compared to the UO<sub>2</sub> cycle are very small [1].

### FAST FLUENCE CALCULATION AND GENERAL MONTE CARLO ANALYSIS

Work on Monte Carlo radiation transport applications [2] continued with the development of a methodology for performing neutron fluence calculations with the Monte Carlo radiation transport code MCNPX. Knowledge of the fast neutron fluence at the reactor pressure vessel (RPV) of PWRs is needed for the prediction of neutron-induced embrittlement. The development of the methodology makes use of a series of relevant OECD/NEA benchmarks, such as the VENUS benchmark series. This series provides extensive flux measurements in the core region, although few measurements were performed in the periphery of the reactor structure. A preliminary MCNPX analysis was carried out to determine the <sup>115</sup>In(n,n') reaction rate in the thermal shield using a detailed, three-dimensional model of the VENUS-1 experiment (see Figure 3). The results of the Monte Carlo calculation were within 15% of measurement. Further work on methodology validation will be performed using a more appropriate set of dosimetry measurements, which were performed at the Balokovo-3 VVER in Russia and are now available in a newly proposed calculational benchmark. Work is also in progress on the preparation of a detailed MCNPX model of the Gösigen PWR as the first application of the Monte Carlo method for fast fluence calculations for Swiss power reactors.

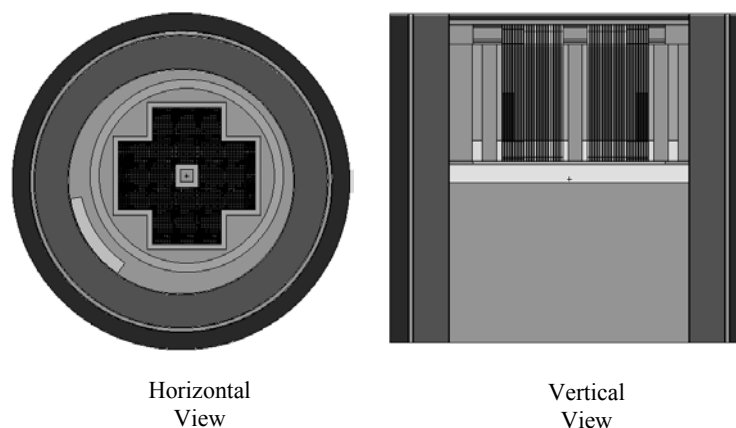


Figure 3: MCNPX model of the VENUS zero-power facility for simulation of the VENUS benchmark with the Monte-Carlo code MCNPX.

Research with Monte Carlo methods also involved depletion applications. Previous analysis with the Monte Carlo burn-up code *Monteburns* has demonstrated the accuracy of the method in predicting the fission-product inventory in highly depleted mixed-oxide fuel. However, considerable variations were observed in the plutonium content of MOX fuel segment BM5, which was irradiated in the Beznau-I PWR as part of the ARIANE international project. A systematic investigation was

undertaken subsequently to identify the parameters that influence the actinide composition, including the effects of nuclear data, irradiation history and modeling choices. The analysis was carried out using both one- and two-dimensional models, three nuclear data libraries (JEF-2.2, ENDF/B-VI and JENDL-3.2). The effect of modeling radial plutonium build-up was also investigated. A cycle-averaged irradiation history was used which predicted the discharge burn-up within 3% of the measured value. The isotopics of sample BM5 were found to be only weakly sensitive to variations in fuel temperature and boron concentration. A pin-by-pin depletion of the fuel assembly, and inclusion of a 100-200  $\mu\text{m}$  outer radial depletion zone in the segmented pin, are needed to reproduce correctly the spectrum in BM5. A large variation was observed in predictions made by the different cross-section libraries, with JEF-2.2 giving the most consistent results [2]. A comparison of the *Monteburns* JEF-2.2 and ENDF/B-VI results with CASMO-4 calculated values showed excellent agreement [4].

## UNCERTAINTY ANALYSIS

Work on uncertainty analysis applied to reactor physics studies resulted in a novel development and application of a statistical methodology to fuel depletion calculations. The methodology is based on the approach proposed in which the uncertainty of a code's input and model variables are treated as stochastic quantities that, when deterministically processed by the code, will generate output values which can also be treated and analyzed as random variables. Statistical sampling techniques are then employed to generate a series of code calculations with combinations of values of input and depletion variables randomly selected, that yield a sample of output values for the results of interest. The application of non-parametric statistical methods is thus possible in order to extract important information about the code output uncertainties. The application of the Wilks' formula helps to determine the number of code executions (size of statistical sample) necessary to obtain **tolerance** intervals with a certain probability content and level of confidence (statistically more appropriate to measure uncertainty than confidence intervals). The intervals measure the uncertainty in the code's predictions by providing maximum and minimum values which bracket a *certain fraction* (e.g. 95%) of all possible output values that might result from the uncertainty in the input variables, and give a confidence level (e.g. 95%) for this statement. When applied to fuel depletion calculations [5] the methodology propagates the uncertainties in the variables describing the fuel and its depletion conditions to the nuclide concentrations as a function of burn-up as well as considering the time of the measurements. Additionally, statistical sensitivity analysis, also part of the methodology, helps to identify those input variables whose uncertainties most contribute to the spread in the calculation results at the time of measurement or as a function of burn-up.

As a first application, an uncertainty propagation study was performed with the objective of quantifying the uncertainties in the estimated nuclide compositions of MOX fuel samples, and comparing them with the experimental uncertainties. For this purpose, isotopic inventories of highly irradiated fuel samples from the ARIANE Programme, which were used to assess the accuracy of the 2-D lattice code CASMO-4 in calculating nuclide concentrations in highly irradiated MOX fuel, [5], [6], provided the necessary experimental data and measurement uncertainties. The application made use of a pin-cell model with seven radial fuel regions, for which detailed irradiation histories were generated from data on sample power density, coolant and fuel temperatures, boron content, and cycle lengths. The JEF2.2 70-group library provided neutronic and nuclide production and decay data. The methodology produced quantitative uncertainty estimates in the form of two-side tolerance intervals, as well as mean values, for the isotopic contents and other neutronic parameters as a function of burn-up. It also yielded tolerance intervals for mean estimates of isotopic composition at the time of measurement (scalar uncertainty). Figure 4a shows an example for  $^{235}\text{U}$  concentration. The experimental measurement at the SCK•CEN radio-laboratory with  $2\text{-}\sigma$  statistical uncertainty band is compared to the nominal prediction of CASMO-4 and the 95%-95% two-side tolerance interval about the mean value resulting from the 100 CASMO-4 calculations. As an example of the uncertainty estimates obtained for other neutronic parameters, Figure 4b shows results for the CASMO-4 calculated assembly  $k_{inf}$ . The application of the uncertainty methodology has, therefore, enabled (a) conclusions to be drawn about the quality of the CASMO-4 calculational meth-

ods/data per se, and (b) corresponding uncertainty estimates to be made for neutronic parameters such as  $k_{inf}$ ,  $\Sigma_a$ ,  $\Sigma_{vf}$ , etc.

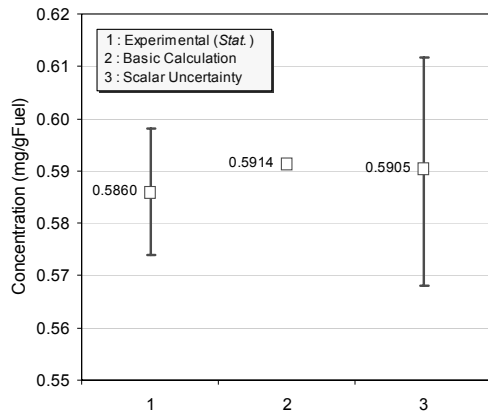


Figure 4a: Two-side 95%-95% tolerance interval at time of measurement for  $^{235}\text{U}$  concentration in MOX sample BM5.

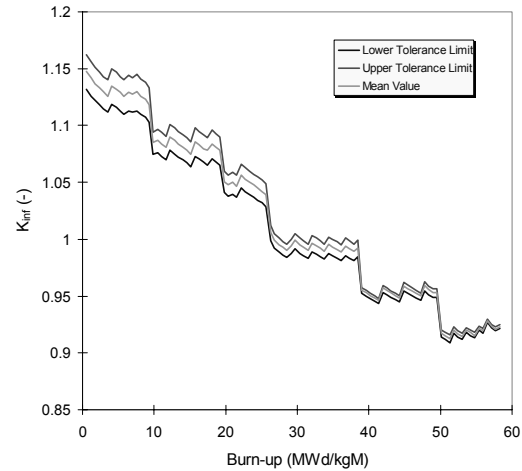


Figure 4b Two-side 95%-95% tolerance interval as a function of burn-up for  $k_{inf}$  of the fuel assembly containing MOX Sample BM5

Research in uncertainty analysis applied to thermal-hydraulic calculations was the object of a new doctoral work initiated this year. It was initiated with a study of the subcooled boiling models used in the new system analysis code TRACE released by the NRC (see below) following the work reported in [7]. A comparison was made of the results of the code with experimental data for heat tubes in a range of pressures representative of operational and transient conditions in BWRs and PWRs. Results from other system codes used in nuclear safety were also included in the comparison. TRACE models showed the quality of their predictions was highest at higher pressures, but overpredictions of the void fractions were also observed in the vicinity of the subcooled boiling initiation regions, which follow a pressure dependency by increasing as the system experimental pressure was reduced.

STARS also initiated its participation in the international CSNI/OECD sponsored BEMUSE programme (see below) aimed at performing a comprehensive evaluation of the current state-of-the-art uncertainty methods applied to uncertainty calculations. TRACE will be used as the reference system code for this participation and, in this context, an uncertainty analysis framework has been developed for this code, which is capable of including uncertainty information in the input variables used by TRACE to describe a certain system and then propagating it in the calculation procedure to the code outputs. The uncertainty information in the outputs is then extracted in a way similar to that described above for uncertainty in depletion calculations. This development is to proceed further with the inclusion of uncertainty in code models next year.

### PEACH BOTTOM TURBINE TRIP TEST 2 INTERNATIONAL BENCHMARK

Work on coupled neutronic thermal-hydraulic analysis [8] has continued in STARS with the completion of the Peach Bottom Unit 2 Turbine Trip Test 2 (PB2 TT2) with the system analysis code RETRAN-3D. This test was selected by OECD/NEA as a BWR benchmark for coupled thermal hydraulics and neutronics codes, and was divided into three different phases. For phase 3, in addition to the base test case, four extreme cases were specified. These hypothetical cases analyzed

what might happen if various safety systems were either switched off or failed and, therefore, no comparison with measured data was possible. The extreme cases were analyzed using the same code (RETRAN-3D) and model as for the base case.

In the base case, both a scram was initiated and the turbine bypass valve opened. Extreme cases 1 (no opening of the turbine bypass valve) and 2 (no SCRAM) considered single safety equipment failures and were, therefore, together with the base case, informative from the point of view of plant safety. Extreme case 3 (combination of 1 and 2) and extreme case 4, with additionally no opening of “safety relief valves (SRVs)”, included the failure of two or three independent safety measures (turbine bypass valves, scram, and SRVs) and were extremely unlikely. In the base case, it was not necessary for the SRVs to open, while this happened in the extreme cases 1, 2, 3. The results showed that the system of SRVs is able to stabilize the reactor power and pressure with or without scram, showing that a single failure will not lead to the failure of the pressure vessel.

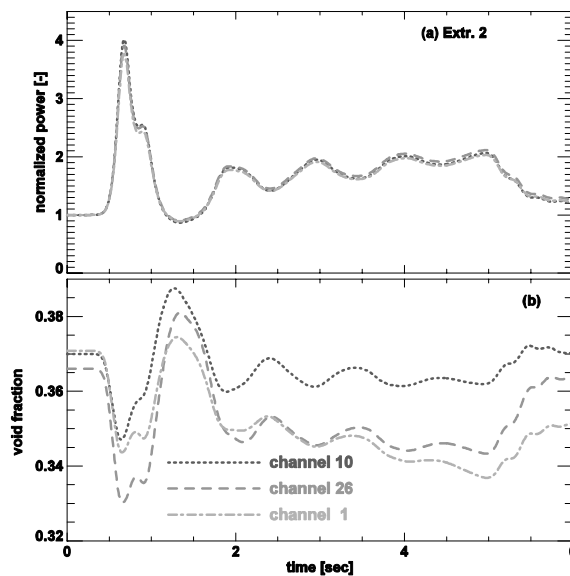


Figure 5: Normalized power and void fraction of different channels for extreme case 2 of the Peach Bottom turbine trip benchmark, which is as the base case but with no scram. Channel 1 represents the fuel assemblies at the centre of the core, channel 10 represents those outside the core centre and channel 26 represents the assemblies at the periphery of the core.

Another important result of this work was that the dynamic coupling of the entire system, ie the relations and interactions between flow rates, pressure, fuel temperature (Doppler reactivity), void reactivity and power, led to largely un-damped oscillations when there was no net flow out of the steam line, while for those cases where there is some net flow (open turbine bypass valves, or open SRVs) the power oscillations were quickly damped.

Finally, it was also observed that the different core channels behave coherently with respect to the channel-average power (see Figure 5 top), but not for other system variables such as the channel-average void fraction (see Figure 5 bottom). Since the void reactivity is the most important parameter influencing the core power in these cases, we see that the neutronic behavior in the core leads to a more coherent behavior of the channel power, because of the closely coupled nature of the neutronics. Altogether the channel-average behavior for different channels demonstrates that the relative channel powers are very similar for all channels and in all cases, whereas non-coherent effects are considerably more evident for other quantities like the channel-average void fraction.

## PLANT ANALYSIS

Plant transient analysis work included the analysis of a postulated main steam line break (MSLB) inside the turbine building of the Mühleberg NPP (KKM). The main objective was to establish the basis for the calculations of the radioactive isotopes contained in the primary coolant, and therefore entrained in the steam and liquid mass discharged through the break. This break location is most critical from the viewpoint of release of activity to the environment, since the turbine building is not included in the barrier formed by the containment. The break outflow is stopped by complete closure of the main steam isolation valves (MSIVs).

This study consisted of three cases at "hot standby" conditions, two of them with a guillotine-type break, and one with a small break size equivalent to 10% of the cross-sectional area of one main steam line, for which the mass of steam and liquid discharged from the break were calculated for different boundary conditions, such as the break size and the MSIV closure time. The computer code used for this simulation is the EPRI operational transient code RETRAN-3D. Since the predictive capability of the simulation partially depends on the adequate prediction of the pressure vessel water level behavior following the system depressurization, an independent assessment of the code capability to track the water level during transient conditions was performed. For this purpose, the database stemming from the General Electric Level Swell experiments was selected, and the experimental results compared with the code simulations. Numerous sensitivity tests were performed following a base case study to identify and quantify the impact of the modeling options. They included sensitivity to the nodalization scheme (for consistency with the system model), the so-called bubble-rise model parameters (bubble velocity and density gradient), and the valve contraction and friction coefficients. Bounding limits were also determined. An example of such simulations is given in Figure 6a. This study clearly showed the adequacy of using the Wilson bubble-rise velocity model [9], [10].

The MSLB analysis results obtained for a 200% break case with a 10 s MSIV closure time were compared with the data from the KKM Safety Analysis Report as shown in Figure 6b. The discrepancy in the results of these two analyses can be explained in part. One of the most important differences is given by the time delay for the liquid to start to flow out of the break: 2.4 s in the KKM analysis and 3.4 s in the RETRAN-3D analysis. Furthermore, the slope is much steeper in the KKM analysis. Both quantities, time delay and slope, are mainly determined by the speed of the level swell in the down-comer, which itself is influenced by the timing of the void formation, by the bubble-rise model parameters and by the initial reactor water level. The large peak of the mass flow rate of up to 2200 kg/s occurring at the beginning of RETRAN-3D results (see Figure 6b) is the consequence of the rapid steam discharge out of both sides of the guillotine break in the steam line. Such a peak is not shown in the KKM analysis. Several sensitivity tests were performed to identify possible modelling impacts, including the nodalization scheme of the steam separators region. It was found that the initial reactor water level was of prime importance when compared to the impact of the bubble-rise velocity, due to the relatively slow depressurization rate.

The overall finding is that agreements between the code simulation and those of the reference analysis were adequate. The difference, which primarily concerns the delay for the mixture level to reach the steam nozzle, could be explained with a conservative methodology, as opposed to the best-estimate approach used in this study.



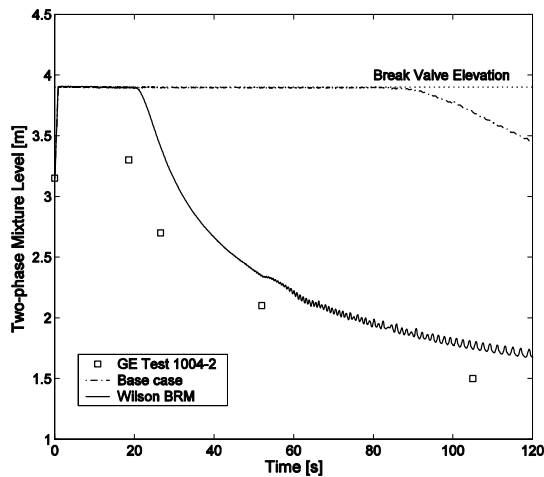


Figure 6a: Comparison of the mixture levels obtained with the base-case and the Wilson bubble-rise velocities (GE Test 1004-2).

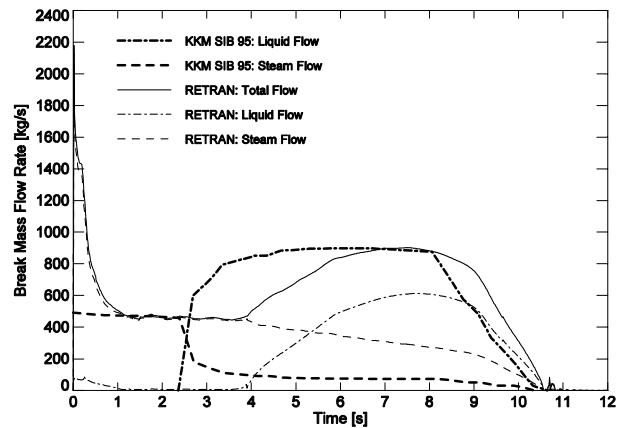


Figure 6b: Comparison of the analysis results for the postulated 200% main steam line break with 10 s MSIV closure time.

## CODE IMPLEMENTATION

STARS received the system analysis code TRACE v.4.0 during 2003, released by the USNRC as the consolidated safety analysis tool supported in the future by this regulatory organization. The code was obtained through a PSI-USNRC agreement within the USNRC sponsored international Programme CAMP. TRACE was installed and tested successfully on the computer platforms used in STARS. A series of applications of this advanced tool have been carried out this year. They range from the analysis of its subcooled boiling models described above and the simulation of a complete LBLOCA LOFT experiment (L2-5) in the context of the work on thermal-hydraulic uncertainty analysis, to preliminary studies on the capability of the code to handle transients at low pressure and power in preparation for work on the PKL shutdown analysis tests and to applications to hydraulic transient in the feed-water lines of BWRs. New improved releases are expected next year that will likely make TRACE the code of choice in STARS for a wide variety of safety applications.

Together with TRACE, the USNRC released the program PARCS, a three-dimensional transient and static core analysis code that confers TRACE the capability of being applied to coupled thermal-hydraulic and neutronic transient analysis. This code was also successfully installed on the computer platforms used in STARS. More extensive use of PARCS is planned for next year.

## DOCTORAL WORK

Finally, 2003 saw the completion of one of the doctoral theses carried out in STARS on BWR stability analysis [11], [12], [13], whose main results were included in last year's STARS report .

## National Collaborations

National collaborations are mainly a result of work requested by HSK from STARS in the form of contractual agreements called "On-Calls". Six of them were completed in 2003, in a variety of topics in both neutronic and thermal-hydraulic plant analysis. Thus, they involved the review of a core monitoring methodology for KKB, an analysis of potential safety issues during small loss of coolant accidents at KKB, the review of KKG-FRAMATOME ANP criticality methodology, the analysis of

criticality of highly enriched fuel assemblies, and the study of the main steam line scenario in support of dose calculations at KKM. Finally, and in collaboration with HSK, STARS took up the organization of the OCDE CSNI/CNRA workshop on large break loss of coolant accident (LBLOCA) in June in Zürich.

This year continued also the fruitful collaborations with the Swiss NPPs, and several studies were performed on the transient behavior of the feed-water system in KKL during selected transients. In addition, support in the area of fuel analysis is received from the Swiss Expert group on Fuel Safety that includes representatives from the utilities, HSK and PSI.

Finally, a doctoral student at EPFL's newly created energy program joined STARS to perform research on uncertainty analysis and its application to nuclear safety calculational methods. This work is performed under the supervision of the head of the Laboratory for reactor Physics and Systems Behavior, who is professor at EPFL.

## International Collaborations

During this year STARS has carried out collaborations with the following institutions:

- University of Illinois, USA, on non-linear stability analysis that has led to the completion of a doctoral thesis.
- University of Valencia, Spain, on work related to stability analysis.
- Studsvik / Scandpower, Sweden / Norway / USA, which provides maintenance and support for their neutronic codes *CASMO-4*, *SIMULATE-3*, *RAMONA-5*.
- Electric Power Research Institute (EPRI), Palo Alto, CA, USA related to the maintenance of the system analysis code *RETRAN-3D* (Computer & Simulation Inc., Idaho Falls, ID, USA).
- Los Alamos National Laboratory (LANL), USA in support of the Monte-Carlo Analyses with *MCNPX* und *MONTEBURNS* (Monte-Carlo with depletion).
- Penn State University (PSU), USA, for the maintenance of TRAC-BF1.
- US-NRC through the CAMP-agreement, for TRACE.

In the context of uncertainty analysis applied to thermal-hydraulic calculations, STARS is participating in the CSNI-OECD sponsored BEMUSE programme. During this year, Phase I (of three initial phases) was completed and work on phase II initiated. Phases II and III are an extension and improvement of the International Standard Problem 13 (ISP-13) with the addition of uncertainty analysis of the code results.

An OECD/NRC international benchmark on the analysis of PWR Rod-Ejection-Accidents in MOX cores containing weapons-grade Plutonium was initiated in 2003. The objective is to assess the level of maturity achieved in the current state-of-the-art kinetics methods used to analyse such types of cores and in particular, to investigate the eventual advantage or necessity of using higher-order kinetic methods compared to the more widely used 2-group diffusion methods. PSI participates in this benchmark. The defined cases have been analysed with the CORETRAN code and the results will be submitted as part of the PSI participation.

During 2003, participation in the CSNI task group on the Action Plan for Safety Margin (SMAP) was initiated and is expected to become active during the coming year.

During year 2003, the STARS participated in two international programs:

First, STARS contributed to the 5<sup>th</sup> Framework EU NACUSP project. The general goals of the NACUSP project are to improve the economics of current and future BWRs through a better understanding and analysis of their stability limits. In that context, the PSI participation during year

2003 consisted mainly in assessing RAMONA-5, which is the modern successor code to RAMONA-3, for the stability analyses of current BWR cores. To that aim, PSI performed a validation of RAMONA-5 for the KKL BOC19 stability tests and the results were compared with the ones obtained with RAMONA-3. The results of the PSI analyses show that RAMONA-5 tend to over-predict the DR compared to RAMONA-3 but that this could to a certain extent be due to the choice of the single-phase wall friction model, which is found to have a large impact on the computational results. This study also indicates that the structural changes introduced in the numerical solution scheme of RAMONA-5 could first have a non-negligible stabilising impact on the dynamical results (i.e. calculated DRs) and secondly could be responsible for the tendency of RAMONA-5 to underestimate the resonance frequency neutron flux oscillations.

Collaboration with the OECD **HALDEN** Project has involved the development of a computer model for the system analysis code TRAC-BF1 that simulated and analyzed the planned LOCA-experiments (IFA-650) with high burn-up fuel from the Swiss NPPs. The final goal of these experiments is to provide insights that can contribute to the improvement of the safety of the highly burnt nuclear fuel elements.

## Summary of 2003 and Outlook 2004

Most of the goals defined for 2003 could be reached; this year also brought a wide range of scientific services (for both HSK and selected utilities) that put a high strain on the team taking into account that two staff positions remained vacant for almost the whole year.

Two goals were not met. Due to delays in the deployment of the electronic archive STARSBase, the implementation of the QMS saw similar delays. In reassessing this situation, the need for support by an external consultant was identified. First coaching sessions have been held late in 2003 with the goal of certification according to ISO-9001 (2000) during the second half of next year. The work on CFD that will be contributed by the Laboratory for Thermalhydraulics (LTH) has not been initiated due to shortage of resources. Since establishing the capability of CFD for safety-related applications remains an important goal of STARS, this goal will be further pursued during 2004.

Considerable uncertainty about the further direction of EPRI's maintenance program for RETRAN-3D, one of the important STARS transient analysis codes, prevailed during this year. It prompted STARS to take an aggressive approach in implementing and getting acquainted with the NRC-sponsored general purpose system analysis code TRACE even before its official release. The experience gained is positive, considering the early stage of the code deployment. In the time frame of a few more years, this code (coupled with the 3D-kinetics code PARCS or similar) has the potential to become the main system analysis code in STARS.

The first application of the STARS methodology for uncertainty assessment to the prediction of burnup represents an important innovation. It allows for a significant improvement in the understanding of the effects of uncertainty in parameters (such as sample power density, coolant and fuel temperatures, boron content, and cycle lengths or assembly geometry) or modeling parameters (radial nodalization in the fuel pin) onto the isotopic composition at the end of life. Further studies to assess the impact on integral parameters such as reactivity are needed in order to fully exploit the benefit of this new approach to the traditional safety analysis that in its best-estimate mode requires an estimate of the calculational uncertainty.

For next year, the following goals will be pursued (beside the general goal of maintaining the codes and models):

- Certification of the Quality Management System.
- Participation in the Balokovo-3 VVER benchmark (OECD/NSC) for validation of the Monte-Carlo based neutron fluence calculations, and first application to KKG.
- Development of Monte Carlo based methodology for criticality safety assessment using selected configurations described in the International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments
- Evaluate PARCS by performing selected RIA transients.
- Validation and use Computational Fluid Dynamics for geometries typical of nuclear reactors.
- Completion of BEMUSE Phase II with the ISP-13 Calculations and related TRACE Assessment
- Convert a BWR model to TRACE and perform selected plant transients for benchmarking
- Complete analysis of low power and pressure transients using TRACE
- Continuation of the research work on uncertainty in the calculation of physics reactor problems.
- Analysis of selected CABRI RIA experiments (UO<sub>2</sub> and MOX) using FALCON and ev. SCANNAIR for the MOX-cases.
- Participation in the Halden LOCA-experiments with TH and thermo-mechanical analysis
- Renewal of collaboration contract with HSK

## Publications

- [1] H. Ferroukhi, M. A. Zimmermann: **Evaluation of the PWR REA Pulse Width for Realistic UO<sub>2</sub>/MOX Cores**, Accepted Paper for PHYSOR-2004.
- [2] Lebenhaft J., Früh R., Chawla R.: **The Effect of Nuclear Data on the MNCP Modeling of Moderator Level Variations in the CROCUS Facility**, Nuclear Science and Technology, Vol. 40, No. 6.
- [3] Lebenhaft J.R., Trelue H.R.: **Validation of MonteBurns for MOX Fuel Using ARIANE Experimental Results**, Mathematics & Computations 2003, Gatlinburg, Tennessee, USA, April 6-10, 2003.
- [4] R.Macian, J. Lebenhaft : **Deterministic and Stochastic Analysis of the Isotopic composition of highly burned fuel samples (ARIANE programme)**, PSI Scientific Report 2003 / Volume IV, 2004.
- [5] R. Macian, M.A. Zimmermann and R. Chawla: **Uncertainty Analysis Applied to Fuel Depletion Calculations**, Accepted Paper for PHYSOR-2004.
- [6] R. Macian, M.A. Zimmermann and R. Chawla: **Assessment of CASMO-4 Predictions of the Isotopic Inventory of High Burn-Up MOX Fuel**, Accepted Paper for PHYSOR-2004.
- [7] R. Macian, P. Coddington and P. Stangroom : **Assessment of RETRAN-3D Boiling Models against Experimental Subcooled Boiling Tube Data**, *Nuclear Technology*, Vol. 142-1, 47-6, 2003.
- [8] H. Ferroukhi, P. Coddington: **The Analysis of Pressurized Water Reactor and Boiling Water Reactor Reactivity Transients with CORETRAN and RETRAN-3D**, *Nuclear Technology*, Vol. 142- 1, 19-34, 2003.
- [9] Y. Aounallah and K. Hofer: **Level-Swell Prediction with RETRAN-3D and its Application to a BWR Steam-Line-Break Analysis**, PSI Scientific Report 2002 / Volume IV, 2003.

- [10] Y. Aounallah and K. Hofer: **Level-Swell Prediction with RETRAN-3D and Application to a BWR Steam Line Break Analysis**, Proc. 2003 Int. Congress on Advanced Nuclear Power Plants (ICAPP '03), Cordoba, Spain, 2003.
- [11] Dokhane A., Hennig D., Rizwan-Uddin, Chawla R.: **Nuclear-Coupled Thermal-Hydraulic Nonlinear Stability Analysis Using a Novel BWR Reduced Order Model: Part 1 - The Effects of Using Drift Flux Versus**, ICONE-11, Tokyo, Japan, April 20-23, 2003.
- [12] Dokhane A., Hennig D., Rizwan-Uddin, Chawla R.: **Nuclear-Coupled Thermal-Hydraulic Nonlinear Stability Analysis Using a Novel BWR Reduced Order Model: Part 2 - Stability Limits of In-phase and Out-of-phase Modes**, ICONE-11, Tokyo, Japan, April 20-23, 2003.
- [13] Dokhane A., Hennig D., Chawla R., Rizwan Uddin: **Nonlinear Stability Analysis of Boiling Water Reactors on the Basis of System Codes and Reduced Order Models**, Jahrestagung Kerntechnik Berlin, Germany, Mai 2003.



Datum: 16. Januar 2004

Von: G. Schoen

## **Begutachtung 2003 für das Projekt 'Human Reliability Analysis'**

### **Einleitung**

Das Projekt 'Human Reliability Analysis' (HRA) wurde 1997 initiiert. Das Forschungsprojekt wird vom Paul Scherrer Institut (PSI) unter der Leitung von Dr. Vinh Dang durchgeführt. Seine Mitarbeiter sind dabei Dr. Bernhard Reer sowie im Rahmen einer Zusammenarbeit mit der Universität Maryland Dr. Y.H. Chang. Unterstützt wird das Forschungsprojekt von den Betreibern der Schweizerischen Kernkraftwerke und der HSK.

Mit der HRA werden die, bei einem Störfall relevante Einflüsse menschlicher Handlungen betrachtet, analysiert und deren Fehlerwahrscheinlichkeiten ermittelt. Damit ist die HRA ein wichtiger Bestandteil der Probabilistischen Sicherheitsanalyse (PSA).

Die internationale HRA-Forschung konzentriert sich vor allem auf:

- Die systematische Erfassung und Quantifizierung von ungeplanten, menschlichen Handlungen, welche den Verlauf eines Störfalls negativ beeinflussen (so genannte 'Error of Commissions' [EOC]),
- die Betrachtung dynamischer Aspekte von Operateurhandlungen
- Ansätze zur Reduktion der Unsicherheit bei der Bestimmung von Fehlerwahrscheinlichkeiten und
- die Modellierung von Teamverhalten.

Das Forschungsprojekt spricht alle Punkte an, behandelt aber schwerpunktmässig die Fragestellungen aus den ersten beiden Punkten.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Die Projektarbeiten beinhalten insbesondere die Weiterentwicklung zur Quantifizierung von EOCs und die Entwicklung von Operateur-Simulationsmodellen, um diese in dynamische PSA-Modelle einzubinden. Auf die beiden Forschungsgebiete wird im Folgenden eingegangen.

- *Error of Commissions*: Das Fehlen einer effizienten Methode zur Identifikation und zur Quantifizierung von EOCs ist der Grund, warum EOCs bisher nicht umfassend in einer PSA berücksichtigt werden. Auf diese beiden methodischen Schwächen geht das Forschungsprojekt ein. Bereits im Jahre 2000 wurde vom PSI eine Methode zur effizienten Identifizierung von EOCs im Rahmen des Projektes entwickelt. Diese Methode wurde auch gleich für ein schweizerisches Kernkraftwerk angewendet. Mit einem auf THERP (Technique of Human Error Rate Prediction) basierenden Ansatz wurden die identifizierten EOCs quantifiziert. Man kam zum Schluss, dass insbesondere die Quantifizierungsmethode weiter verfeinert werden muss. Ziel war dabei, die Einflüsse, welche zu Fehlhandlungen führen, detaillierter zu berücksichtigen.

Dazu analysierte und beschrieb man so genannte "risk factors" (Umstände, die eine Fehlhandlung der Operateure wahrscheinlicher machen) und „mitigation factors“ (Umstände, die eine Fehlentscheidung der Operateure weniger wahrscheinlich machen). Dieser Ansatz wurde im Jahre 2002 vom PSI veröffentlicht. Für das Jahr 2003 war der Abschluss der Entwicklung einer verbesserten Identifizierungs- und Quantifizierungs-Methode von EOCs geplant.

Um die Beschreibung und die Definition der "risk factors" und der "mitigation factors" breiter abzustützen, wurden im vergangenen Jahr insgesamt 25 reale Ereignisse untersucht. So ist man jetzt in der Lage, eine strukturierte Vorgehensweise zur Bestimmung dieser Einflussgrößen zu beschreiben. Damit sollte es möglich sein, Referenzszenarien zu quantifizieren. Diese Referenzszenarien dienen dann als Grundlage für eine Quantifizierung ähnlicher EOCs. Mit der Behandlung von zwei Referenzszenarien wurde bereits begonnen. Als Referenzszenarien wählte man das Operateurverhalten im Zusammenhang mit der Aufrechterhaltung der Integrität der Hauptkühlmittelpumpe und das Operateurverhalten im Zusammenhang mit der Sicherheitseinspeisung. Diese Szenarien sind auch für andere HRA-Forschungsgruppen interessant und können deswegen als Testbeispiele für verschiedene internationale Vorschläge zur Quantifizierung von EOCs dienen. Die überarbeitete Methode zur Identifizierung von EOCs und zur Beschreibung der Einflussgrößen auf die Zuverlässigkeit von Operateurhandlungen wurde im vergangenen Jahr publiziert. Eine Quantifizierung der EOCs der Referenzszenarien war aus Ressourcengründen im Berichtsjahr nicht möglich.

- *Dynamische PSA*: Mit dynamischen PSA-Modellen (d. h. zeitabhängige Modelle für das Anlagen- und Personalverhalten) können die Interaktionen zwischen Mensch und Anlage besser abgebildet werden. Die Verfügbarkeit des zeitlichen Verlaufs von wichtigen Anlageparametern verbessert insbesondere die Modellierungsgrundlagen der Diagnoseprozesse der Operateure. Eine dynamische PSA ermöglicht eine flexible Modellierung der Konsequenzen von Fehlentscheidungen. Im Bereich dynamische PSA arbeitet das PSI eng mit der Universität von Maryland zusammen. Dabei übernimmt die amerikanische Universität schwerpunktmässig die Softwarearbeiten, während sich das PSI auf die Entwicklung von HRA-Modellen konzentriert, welche für verschiedene Untersuchungen in die dynamischen PSA-Modelle eingebracht werden können. Gegenstand der Untersuchung war das Verhalten der Schicht bei einem Frischdampfleitungsbruch. Für das Jahr 2003 war die dynamische Modellierung der Szenarien und die Entwicklung und Implementierung eines entsprechenden HRA-Modells in das Simulationsmodell geplant. Das Modell ermöglicht, Szenarien zu entwickeln, die EOCs beinhalten. Die Szenarien werden vom Softwareprogramm auf Grund der gegebenen Vorschriften und der thermohydraulischen Analysen selbst ermittelt.

Im Jahr 2003 wurde das Simulationsmodell aufgebaut. Es beinhaltet jetzt Modelle zur Simulation der Thermohydraulik, der probabilistischen Bruchmechanik und des Operateurverhalten. Das Modell vermag die ersten 7 Minuten zu simulieren. Dies beinhaltet die Reaktion der Operateure auf einen Frischdampfleitungsbruch, wobei der Zusammenhang von Operateurhandlungen und Vorschriften unterschiedlich modelliert werden kann. Es wurde versucht, ein realistisches Verhalten der Operateure darzustellen. Damit ist eine überlegte Anwendung der Vorschriften gemeint, welche konsistent mit dem Wissen und der Ausbildung der Operateure ist.

Das PSI leitet eine internationale HRA-Arbeitsgruppe der OECD-NEA-CSNI und hat auch auf diese Weise auf die internationale Entwicklung in diesem Gebiet einen bedeutenden Einfluss.

### Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?

- Die Arbeiten des PSI konzentrieren sich auf aktuelle und für die Weiterentwicklung der PSA wichtige Fragestellungen. Die PSI Aktivitäten orientieren und messen sich am internationalen Stand der Forschung.
- Durch die Behandlung von werkspezifischen Fällen werden die Störfallvorschriften aus dem Blickwinkel der Forschung hinterfragt. Solche Diskussionen haben sich schon in der Vergangenheit als sehr fruchtbar erwiesen.
- Das PSI überprüft im Auftrag der HSK auch HRA-Studien. Diese Arbeiten waren auch im vergangenen Jahr besonders intensiv. Das Wissen, welches das PSI durch das Forschungsprojekt gewinnt, bringt das PSI auch bei der Reviewtätigkeit für die HSK ein. Dadurch steht der HSK ein hervorragendes HRA-Review-Team zur Verfügung.
- Durch die Zusammenarbeit mit der Universität Maryland wird der Aufwand bei der Softwareentwicklung optimiert.
- Das PSI führt und beteiligt sich an international wichtigen Arbeitsgruppen.

### Ausblick und Verbesserungsvorschläge

#### Ziele für 2004:

##### EOC:

- Vervollständigung und Dokumentation der zwei Referenzfälle (insbesondere Quantifizierung)
- Dokumentation der Quantifizierungsmethode, mit welcher EOCs anhand von Referenzfälle quantifiziert werden
- Fertigstellung des Berichtes über die ursprünglichen, werkspezifischen EOC-Fallstudie
- Kurzer Bericht über die mögliche Erweiterung der Methode für den Betriebszustand Stillstand

##### Dynamische PSA:

- Vervollständigung der Analyse, so dass die Szenarien bis zu den Endzuständen simuliert werden können. Dabei soll die Modellierung des zeitlichen Ablaufes von Operateurhandlungen verbessert werden.
- Die Methode und die Resultate sollen in einem Bericht festgehalten werden.



Jahresbericht 2003, 14. Januar 2004

# Human Reliability Analysis (HRA)

## Applications and Methods Development

V.N. Dang  
Paul Scherrer Institut  
5232 Villigen PSI  
056 310 2967, vinh.dang@psi.ch, www.psi.ch  
BFE Projekt-20255/Vertrag-Nummer 82610  
Dauer des Projekts (von 2001 – bis 2004)

### ZUSAMMENFASSUNG

Die Projektarbeiten im Jahr 2003 umfassten zwei Hauptgebiete, die Definition und Analyse von Referenzfällen als Grundlage einer Quantifizierungsmethode sowie die Fertigstellung einer vorläufigen Analyse unter Anwendung der dynamischen Ereignisbaummethodik.

Im ersten Gebiet wurde eine Methode für die strukturierte qualitative Analyse festgelegt und auf 25 Ereignisse, in denen Entscheidungsfehler auftraten, aus der internationalen Betriebserfahrung angewendet. In der Methode werden die Schlüsselaspekte eines Ereignisses mit Hilfe von Risiko- und Zuverlässigkeitsfaktoren bewertet: Zeitdruck, Verifizierungsaufwand, Nutzaussicht, Schadenspotential, und personelle Redundanz. Die Anwendung zeigte, dass unterschiedliche Ereignisse in systematischer Weise erfasst werden konnten. Andererseits benötigt das Referenzfallkonzept eine Erweiterung zur besseren Unterstützung von vergleichenden Analysen. Obwohl die Erzielung einer Konsensschätzung für einen Referenzfall noch fortgesetzt wird im Hinblick auf spezifische Situationen, kann ein solcher Fall schon auf andere Situationen und Konfigurationen von Faktoren angewendet werden. Mit dieser erweiterten qualitativen Grundlage kann sich die nachfolgende Arbeit nun der Quantifizierung von Referenzfällen widmen.

Auf dem Gebiet der dynamischen Risikobewertung wurde eine anfängliche dynamische Analyse, als Bestandteil einer Fallstudie, fertiggestellt. Die Analyse der Aufgaben der Betriebsmannschaft nach einem Frischdampfleitungsbruch, der das Szenario für die Studie bildete, wurde fertiggestellt und deren Ergebnisse als Eingangsgrößen für die dynamische Modellierung verwendet. Das wesentliche Ergebnis dieser Phase ist, dass die Elemente des Modells der Betriebsmannschaft erlauben, das Vorgehen nach Vorschriften in realistischer Weise zu modellieren, d.h. mit der Option von regelbasiertem Verhalten in Ergänzung zu explizit vorgeschriebenem Verhalten. Um sicherheitsrelevante Erkenntnisse zu erhalten, muss noch der zeitliche Ablauf wesentlicher Handlungen ausgewertet und repräsentativen Daten angepasst werden. Die nachfolgende Arbeit wird sich auf die Analyse der Ergebnisse der dynamischen Ereignisbaumanalysen, insbesondere hinsichtlich wichtiger Sequenzen und Fehlermöglichkeiten im Rahmen des Szenarios, konzentrieren.

## Summary

In 2003, the project work addressed two main goals, the definition and analysis of reference cases to be used as a basis for a quantification method and the completion of a preliminary dynamic analysis in the case study application of the dynamic event tree methodology.

In the first area, a structured method for the qualitative analysis was defined and applied to 25 operational events from the international experience. The method characterizes the event by examining the risk and mitigating factors and their relation to key aspects of the situation: time pressure, verification effort, benefit prospect, damage potential, and personnel redundancy. The application showed that a wide range of events could be systematically described. On the other hand, the reference case concept needs to be extended to better support the comparative analysis. Although the consensus estimate associated with the reference case will continue to refer to a specific situation, the case will address other situations and configurations of factors. With this broader qualitative basis, the follow-on work will now address the quantification of reference cases.

In the area of dynamic risk assessment, the initial dynamic analysis in the case study was completed. The task analysis of the crew response to the Main Steam Line Break scenario selected for the application study was completed and this response was modelled in the inputs to the simulation model. The key result at this stage is the finding that the crew model elements allow the procedure-guided mode of response to be modelled realistically, that is, with optional rule-based behaviours being added to the actions explicitly guided by the procedure. In order to obtain valid safety insights, the timing of the key response actions must be examined and compared with values representative of actual performances and the durations assumed for different types of operator tasks need to be adjusted. The main focus of the upcoming work will address issues with the analysis of dynamic event tree results; in particular, the identification of significant sequences and error opportunities within the range of scenarios.

## Project Objectives

Probabilistic Safety Assessments (PSAs) are systematic studies performed to obtain insights for maintaining and improving the safety of nuclear power plants. In the Human Reliability Analysis (HRA) Project, models and methods for the analysis of human factors in PSAs are developed, applied, and evaluated. This research aims a) to reduce the uncertainties in the quantification of the probabilities of human errors, and b) developing human performance models for dynamic risk assessments.

The main goals for 2003 were:

1. To define reference cases and obtain probability estimates for human actions in these situations, as a foundation for **quantification**.
2. To complete the initial dynamic (simulation) analysis for the application case study, in the project area of **dynamic risk assessment**.

## Work Performed and Obtained Results

### Quantification methodology

The analysis of the decision-making of personnel is a central issue in the Human Reliability analyses of probabilistic safety studies. This issue takes on an increased importance when scenarios

involving errors of commission are considered, for two reasons. First, situation assessment and the selection of the response is a key element in many of these scenarios. For instance, they involve the misinterpretation of the facility information, the selection of a response that is inappropriate for the situation, or a combination of both of these elements. Second, if an error is decision-related, it is likely to have an impact on the performance of subsequent tasks. In other words, the analysis of subsequent tasks needs to examine the relation to the preceding error. As a result, this work emphasizes the analysis and quantification of decision-making.

A large number of factors influence human performance in decision-making; at the same time, the performance can be very sensitive to one or two factors, depending on the situational context. Consequently, the existing HRA methods rely strongly on expert judgment to address these factors. To reduce the uncertainties associated with expert judgment, a quantification concept is proposed that ties the quantification of a given situation to reference cases. Each reference case is concerned with a specific task in a specific scenario. Quantification is then based on comparing the given situation to related reference cases. In this way, the expert judgment process uses the reference cases to 1) support the qualitative analysis, and 2) to support the estimated probabilities.

Four precursor events from the international nuclear power plant operating experience were analyzed as a basis for defining corresponding reference cases. A structured analysis approach was defined and applied to these events. Two reference cases relevant to actions commonly modelled in the PSAs of nuclear power plants (pressurized water reactors) at full-power were defined. The analysis performed is qualitative.

The two reference cases address:

- degradation of reactor coolant pump integrity, potentially leading to a loss of coolant through the pump seals (a seal LOCA). Reactor coolant pumps are designed with seals through which there is a controlled, continuous leakage of coolant. If the pump is operated outside its designed conditions, the seals may be damaged and an excessive leakage of coolant will occur. Many PSA sequences model actions to stop the reactor coolant pumps to avoid such leakage, when the corresponding plant conditions result from other events in the scenario. A seal LOCA in such a situation would aggravate the scenario and require additional injection of coolant.
- degradation of safety injection. Safety injection refers to emergency systems for adding coolant to the reactor coolant system. In many scenarios, these systems start automatically when the plant indications meet the criteria indicative of a loss of coolant or an excessive decrease in the level. In many scenarios, enough coolant is added after some time and safety injection needs to be reduced or terminated. A premature reduction or stopping of safety injection is the concern modelled by this reference case.

The qualitative analysis of the corresponding precursor events is the first step in obtaining a probability estimate for these reference cases. For reference cases to be useful as a basis for quantification, a comprehensive set of possible situations or configurations of factors needs to be provided with each reference case. In this way, the quantification of a reference case is for a specific situation but includes information needed to adjust this estimate for other situations. The precursor events analyzed for these reference cases represent one of these possible situations or configurations. Additional events from operating experience relevant to these reference cases will be incorporated at a later stage; also, information obtained from simulator experience or training can also be used in this way.

The structured approach used for the qualitative analysis is intended to characterize the specific aspects of a precursor event in terms of a model. In addition, it allows diverse precursor events to be related to a given reference case. This analysis is structured to address the risk and mitigating factors systematically. The mitigating factors are addressed at three successive levels:

- the prevention level. At this level, the relation between the risk factors and counteracting factors determines whether the error is likely to take place.
- the correction level, immediately after the error has taken place. For example, an alarm occurring as a result of the error may be a signal to re-evaluate the action that has been performed. The

effectiveness of a correction factor is also probabilistic; the error may or may not be recognized as a result of the alarm.

- the recovery level. As the scenario continues to evolve, other indications and alarms may trigger a reevaluation of the situation, providing an opportunity to identify that an error has taken place and to respond accordingly. It should be noted that reversing the erroneous action at this stage may not be the appropriate response at this stage; some error of commission scenarios are based on attempts to reverse an erroneous action.

This structured approach examines the potential risk and mitigating factors in terms of the following aspects of the situation: time pressure, verification effort, benefit prospect, and damage potential, and personnel redundancy. The evaluations of these aspects are used to adjust the impact of the direct factors.

This structured approach was used for the two precursor events related to the reference cases. In both cases, the analysis focuses on the prevention level. In the precursor event related to the degradation of reactor coolant pump (RCP) integrity, the operators are responding to an abnormal situation that is not an emergency (U.S. pressurized water reactor, 1995). The lower seal of an RCP has failed during reactor start-up. The operators attempt to re-establish the operation of the lower seal by a restaging operation; restaging refers to a sequential depressurization of the seal cavities from the top seal to the lower seal. This results in failure of the RCP middle seal, i.e. further degradation of the RCP integrity. In response to the indication of the middle seal failure, the operators interrupt the reactor start-up and cool down the reactor.

Based on the information on the event, the operators have apparently failed to observe the rule that a restaging should not be performed on an operating RCP when the coolant temperature is above 93°C. The risk factor identified for this event is the lack of procedural guidance and/or training on the conditions required for performing restaging. No additional risk factors and no significant counteracting factors were identified.

In the precursor event for the second reference case, related to the degradation of safety injection (SI), the operators were responding to a reactor trip on high pressure, caused by a loss of heat sink (U.S. pressurized water reactor, 1992). The initial automatic response of the plant occurred successfully, the pilot-operated relief valves (PORVs) of the pressurizer and at least one of the pressurizer safety code valves (PCVs) opened to relieve pressure. However, the evolution of the event became abnormal when a PCV subsequently failed to reclose, resulting in a small LOCA (loss of coolant) event and a continuing decrease of the pressure.

As the reactor pressure drops below 135 bar, the safety injection (SI) system started automatically to inject coolant. The operators blocked the PORVs. Subsequently, they reduced SI flow by stopping two of the three operating pumps. The subcooling margin (SCM) criterion for reducing SI flow was incorrectly evaluated due to an incorrect display of the reactor pressure on the main, front-panel indicator. This criterion is a function of pressure and the failure of this indicator is not detected.

The main contributing factor for the erroneous reduction of SI flow is the failed-high indicator. The structured analysis highlights the interaction of the risk and mitigating factors. At the prevention level, the misleading indication is a key factor contributing to risk. A second contributor is that the indications match the operators' expectations of the evolution of the system response. The reactor has tripped on high pressure, the relief and safety valves have opened to relieve pressure, safety injection starts on the low pressure and restores the pressure. However, there are factors with the potential to counteract risk factors. These include correct redundant indications of the reactor pressure, an indication of the discrepancy on the Safety Parameter Display System (QSPDS at this plant), and the redundancy in situation assessment provided by the shift technical advisor (STA). The combination of these defenses fails to be fully effective in the event. The redundant indications are provided on a back panel so a cue for checking these is needed. The QSPDS indication of the discrepancy among the pressure measurements is unclear and confusing. These are partially effective: the STA in fact detects the discrepancy and reports it to the shift leader (SRO). However, the redundancy afforded by STA's role is ineffective: the SRO fails to use this informa-

tion. It should be noted in this case that, at the recovery level, the indications of the LOCA (containment conditions, rupture of the quench tank rupture disk) lead the operators to initiate the cool down the reactor; Using cycled operation of SI and of the charging system, the reactor coolant system is successfully refilled. In conclusion, this event shows that the estimation of probabilities cannot be solely based on whether the factors are present; the likelihood of the interactions among the factors must also be assessed.

In addition to the two precursor events related to the defined reference cases, the analysis of twenty-three additional events using this structured approach provided concrete illustrations of the factors. Finally, converting the analysis to numerical values, a score has been computed. This score will be investigated in the next stage in terms of its usefulness for prioritizing potential error situations.

### **Dynamic risk assessment**

In this area, the work has focused on the application of the dynamic event tree methodology in a case study of the main steam line break scenario. This case study uses the *ADS* software [1] and models to examine the risk of damaging the reactor pressure vessel through overcooling, which is referred to as pressurized thermal shock (PTS). Two elements of the case study were completed: 1) completion of the analysis of the crew response in the scenario, and 2) implementation of the response in the dynamic event tree model. In addition, the dynamic event tree analysis has been performed for the first phase of the scenario.

The task analysis addressing the crew response was completed for the main steam line break scenario. This analysis defines how the crew is expected to respond to this type of scenario on the basis of the emergency procedures. The analysis identifies

- the overall strategy for main steam line break scenarios
- the plant indications associated with the important situation assessments the crew needs to make to successfully deal with the scenario: how do the operators understand what is happening and on the basis of which indications
- the key actions that need to be performed as part of the overall strategy and the cues for these actions

The overall strategy to prevent PTS in the scenario refers not only to the actions required of the operators but also to the automated actions of the plant (through its automatic control and safety systems). Thus, it is not only the required human response but instead how the whole human-machine system should respond to the event. As such, the implementation of the strategy is supported by the procedures, for the operators' response, but also by the automatic response of the control and safety systems.

It should be noted that some required actions need to be performed on the basis of rules learned in training, for instance, because these would be performed too late if guided only by the procedures. Such cases can occur when the action is required within a short time following its cues. In these cases, the procedures are the formal description of the required response but are not actually used in the situation. (At most, they would be used as a back-up, to check whether any steps have been omitted in recalling and implementing the rules.)

Implementing the crew response in the dynamic event tree model refers to defining the inputs to the crew model. These inputs include the procedure steps and the operator knowledge base, which consists of the knowledge of the operators needed to interpret and perform the procedure steps and the trained knowledge identified in the task analysis.

The crew response of interest in the application case study is the procedure-guided response. A significant result obtained in this step is that the crew model implemented in the *ADS* could be used to treat the procedure-guided response. This is significant in view of the design of the crew model, which is oriented to modelling a response based solely on knowledge, i.e. without guidance from procedures. Previous applications of the crew model treated procedure-following with two extreme simplifications: first, the crew response was "literal" or "robotic", modelling no alternative

behaviours within the procedure-following response; second, the procedures were fully interpreted by the analyst in defining the inputs.

A dynamic event tree analysis was performed for the first phase of the response. The generated event tree is shown in Figure 1. Although it is represented similarly to a “classical” event tree, the tree is generated “dynamically” by allowing the plant response model and the crew model to interact under the control of the dynamic event tree software. These interacting simulation models determine the sequence of events (branches) that are shown in the event tree as well as when these events occur in time. The labels next to the branches, e.g. “PR\_0”, “PR\_3”, or “DM\_0”, indicate the event. The PR\_ labels refer to the triggering of rule-based actions while the DM\_ labels refer to the crews’ determination that a Main Steam Line Break has occurred.

Examination of the dynamic event tree result showed that the variation of the scenario evolution represented by these branches corresponds to whether the rule-based actions occur in the sequence. An additional variation is the timing of these actions. In sum, the diverse sequences are generated depending on whether and when the rule-based actions are triggered; moreover, the interacting simulation models ensure that the plant information seen by the operators reflects both the plant conditions at the time that the modelled operators check this information as well as the consequence of these actions.

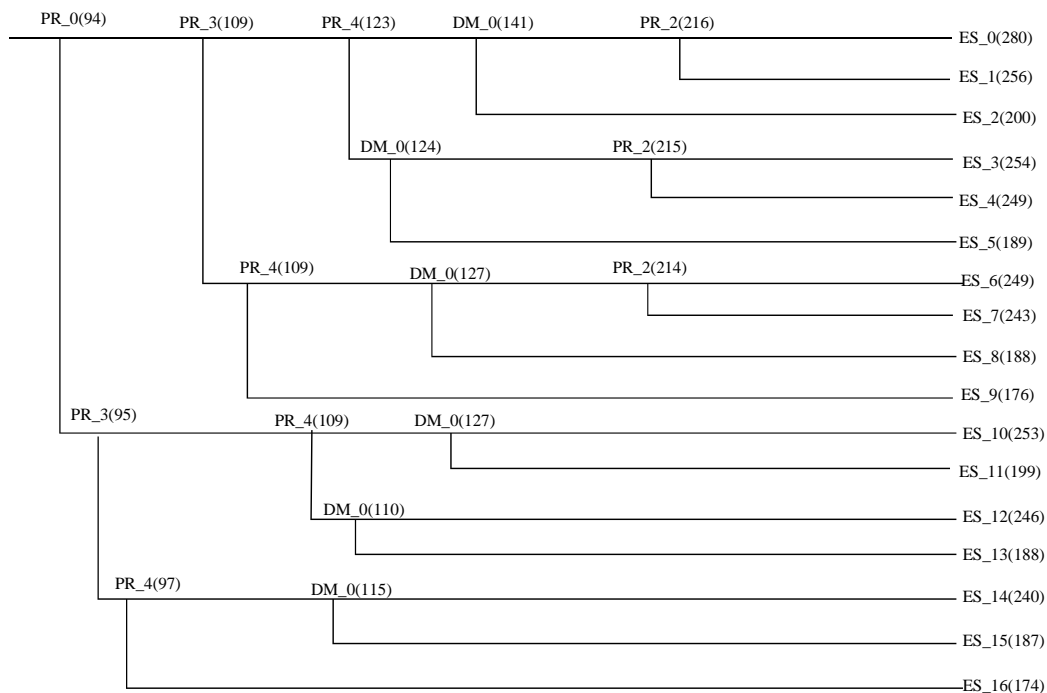


Figure 1. Dynamic event tree obtained for preliminary analysis of the first phase.

With the durations currently assumed for the different types of operator tasks (interpreting a procedure step, checking the indication of a plant parameter, manipulating switches to operate equipment), the tree represents approximately seven simulated minutes and the operators have performed the first phase of the procedures dealing with the early response to the Main Steam Line Break event. The inputs required to simulate the subsequent 10-15 minutes (in simulated time) have also been prepared; the dynamic analysis will be performed and the results evaluated in the next phase of the work.

The results obtained at this stage highlight the potential of the dynamic event tree methodology for mapping out variants in the plant-operator response to a given initiating event, taking into consideration potential differences in the strategies and choices of the crews. Although the preparation of

the inputs for a dynamic analysis requires a significant analysis effort, the individual sequence evolutions and the human-machine interactions in these evolutions are accounted for in the generated tree. In contrast, the analysis based on an event tree requires separate analyses and major simplifying assumptions, since the analyst must interpolate the plant response from a relatively small set of transient cases to obtain the plant response corresponding to each combination of hardware and human events while considering how the plant information would influence the choices of the crew. Finally, in the generated tree, each branching point and the scenario evolution between the branches can be examined in terms of the plant conditions as well as of the crew's decision-making and actions. This information can then be used to support the analysis of these actions in an HRA.

## Publications

B. Reer, *CESA – eine Methode zur Analyse von Gefährdungen durch Errors of Commission*, in: H.-G. Giesa et al. (Hg.), *Psychologie der Arbeitssicherheit und Gesundheit*, 12. Workshop 2003, S. 167-171, Asanger Verlag, Heidelberg, 2003.

## National Collaboration

The research within the project is oriented to issues relevant for the Swiss nuclear power plants and to the conditions at these facilities. Although events from the international experience are used in the work, e.g. to identify error mechanisms in a broad range of settings, the interpretation of this information accounts for the procedures and practices at each of the Swiss plants. For practical reasons related to the availability of the plant thermal-hydraulic model and previous work performed by our partners at the University of Maryland, the dynamic event tree case application study deals with a scenario at a U.S. nuclear power plant. Although the objective of this work emphasizes methods for the application of the dynamic event tree methodology, a Swiss case would generally be preferred because of the potential safety insights. Such a case is envisioned for the follow-up work.

Separately, two efforts are in the early planning stages with the Swiss plants:

- A research study on the initiation of challenges to plant safety through the performance of inappropriate actions.
- An analysis of the impacts on the reliability of human performance related to proposed modifications of the procedures.

## International Collaboration

As noted above, the research related to dynamic risk assessment is being performed together with the University of Maryland (Prof. A. Mosleh). In the cooperation and in the on-going application case study, PSI has the lead responsibility for the development of the human performance models within the framework and for the human factors analyses. The Maryland team has the main responsibility for the integration of the human and machine models and for the development of the software, currently aimed at providing analysis support features and implementing parallel processing.

A second international initiative is a task group within the OECD NEA / Committee for the Safety of Nuclear Installations (CSNI). The PSI proposed and coordinates a task on Human Reliability Analysis, "Outlining a Framework for HRA Information Exchange" [2], in which regulatory, re-

search, and industry viewpoints are represented. A diverse range of methods with similar elements characterises current HRA developments; one aim of the task is to draw out the shared elements of the emerging methodology, stressing the convergence of the HRA framework and its benefits. On this basis, the task is to identify the data needs that are associated with this framework, i.e. that would be useful for the range of methods, and to develop a roadmap for the future exchange of information useful for HRA. In the work during 2003, the main issues that need to be addressed and the key elements of the roadmap for a future exchange of information have been identified.

Finally, the project was active in its cooperation with the OECD Halden Reactor Project, of which Switzerland is a signatory. This activity addresses mainly the collection of data from Halden's simulator facility and the analysis of this data as it relates to HRA. The CSNI task and the Halden efforts in these areas represent concerted, international efforts to address the issue of HRA data. In this context, the project participates both as an HRA research group as well as the coordinator of CSNI HRA task discussed above, to ensure a close coordination between these related efforts.

## Evaluation of 2003 and Outlook 2004

The activities of 2003 were aimed at two main goals: the definition and quantification of reference cases, as a basis for the **quantification** of human errors; and the completion of the initial dynamic analysis in a case study application of the dynamic event tree methodology, as part of the development of methodology and tools for **dynamic risk assessment**. An evaluation of progress and the outlook in the two areas are discussed next.

### Quantification methodology.

In the quantification concept, the reference cases with their consensus human error probability estimates are intended to be used for quantifying situations that share features of the reference cases. Reference cases should be selected with the aim to cover the significant actions in probabilistic safety assessments; in this way, the uncertainty in the estimates for these actions is addressed first by the effort expended on the consensus estimate.

As initially envisioned, the consensus estimate of the reference case, which is based on a specific situation and the performance conditions associated with a specific facility, would be adjusted for other situations by comparing the reference situation and the situation of interest in terms of differences in the driving factors. A structured method for the qualitative analysis was defined with the aim to describe the reference situation and the situation of interest such that these could be compared.

The application of the structured method to 25 events from operational experience, including the two events related to the defined reference cases, led to the following conclusions:

1. The factors and situational aspects (time pressure, verification effort, benefit prospect, damage potential, and personnel redundancy) examined by the method are applicable to a wide range of events.
2. The analysis of additional events from the operational experience (and from simulated situations) will probably lead to the identification of additional risk factors. The quality of the estimates would be expected to improve when the situation is examined in terms of a larger set of factors.
3. While the consensus estimate for a reference case corresponds to a specific situation, other situations that may arise need to be considered in the reference case. Only in this way can the reference case support the analysis and quantification of other situations.

The next objective suggested by these conclusions is to provide additional qualitative analyses to support the reference case. Rather than dealing with the reference situation defined within the case, these additional analyses will address situations and configurations of factors related to the reference case. In this way, they comprise a broader basis for the comparative analysis that will underlie the quantification in predictive analyses. These configurations will be defined by examin-



ing other precursor events related to the reference. In addition, the quantification of the reference situation itself will be now addressed.

#### **Dynamic risk assessment.**

The initial dynamic analysis based on the dynamic event tree methodology, as implemented in the ADS software, was completed. The task analysis of the crew response to the Main Steam Line Break scenario selected for the application study was completed and this response was modeled in the inputs to the simulation model.

The results obtained, in the form of the generated event tree, are based on the assumed durations for the different types of operator tasks. In addition, the analysis covers only the first phase of the response in the scenario, dealing with the short-term actions to prevent pressurized thermal shock. In order to obtain valid safety insights, the timing of the key response actions must be examined and compared with values representative of actual performances. Comparisons on the global and local time scale, i.e. the time to reach a key action in the scenario and the time for a task and its subtasks, respectively, will be used to adjust the modeled durations.

The key result at this stage is the finding that the crew model elements allow the procedure-guide mode of response to be modeled realistically, that is, with optional rule-based behaviors being added to the actions explicitly guided by the procedure. This reduces the scope of the operator modeling task anticipated in the development plan and allows the effort to focus on methods to analyze the dynamic event tree results. With the adjusted duration parameters, the dynamic analysis will be performed through the later phase of the scenario and the results analyzed.

## **References**

- [1] Y.H. Chang, A. Mosleh, **ADS: A Computer Program for Dynamic Probabilistic Risk Assessment**, *Proceedings of the ANS International Topical Meeting on Probabilistic Safety Assessment*, Detroit, Michigan, USA, 6-9 October 2002.
- [2] V.N. Dang, **Outlining a Framework for HRA Information Exchange**, Proposal for Task 2002(1) of the Working Group on Risk Assessment, OECD Nuclear Energy Agency Committee on the Safety of Nuclear Installations, June 2002.



Datum: 5. März 2004

Von: R. Scheidegger

## **Begutachtung 2003 für das Projekt „Molekularbiologische Untersuchungen zur zellulären Radiosensitivität“**

### **Einleitung**

Die genetisch kontrollierten Prozesse, die in einer bestrahlten Zelle ablaufen, sind sowohl für die Optimierung der Strahlentherapie als auch für den Strahlenschutz ein zentrales Thema. Es gilt, Gene zu finden, die strahleninduzierbar sind, die als Reaktion auf eine Bestrahlung vermehrt Produkte bilden (RNS und Proteine). Zuerst müssen Gene gesucht werden, die überhaupt auf Bestrahlung mit erhöhter Aktivität reagieren, erst dann können die Experimente zur Identifikation der Produkte durchgeführt werden. Strahleninduzierbare Gene, deren Produkte die Zelle inaktivieren oder abtöten, wären ein ideales Therapie-unterstützendes Werkzeug.

Das Wachstumspotential von Tumoren ist unter Anderem von der Blutversorgung abhängig (siehe Projekt Angiogenese); ist diese nicht mehr gewährleistet, kann der Tumor seine Zellmasse nicht vergrössern. In einer kombinierten Gen- und Strahlentherapie müssten zuerst gentechnisch hergestellte strahleninduzierbare Gene in die Zielzellen eingeführt werden, deren cytotoxisches (zelltötendes) Produkt nach Bestrahlung produziert wird und die Zelle abtötet. Zentrale Voraussetzung ist aber, dass diese Gene nur in den gewünschten Tumor-Zielzellen aktiv werden.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Die anfangs gefundene Erhöhung der Genaktivitäten war auch bei hohen (therapeutischen) Dosen so gering, dass keine natürlich strahleninduzierbaren Gene eindeutig identifiziert werden konnten. Dank der gewählten molekularbiologischen Methode konnten aber trotzdem grosse Mengen an genetischen Informationen gewonnen werden, mit deren Hilfe das Muster strahleninduzierbarer Gene besser erforscht werden kann.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Antwort auf die Frage, welche und wie viele Gene als Antwort auf eine Bestrahlung aktiv(er) werden ist ein zentraler Punkt der molekularen Strahlenbiologie. Die im vorliegenden Projekt verwendete Mikroarray-Technologie ist eine äusserst viel versprechende Methode, mit der die Expression (Aktivität) einer grossen Anzahl von Genen bestimmt werden kann. Wenn es gelingt, strahleninduzierbare Gene zu finden, und sie auch bei den im operationellen Strahlenschutz wichtigen Dosen zu induzieren, so hätte man ein zusätzliches Werkzeug der biologischen Dosimetrie.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die weiteren Schritte beinhalten verschiedene Varianten von künstlich hergestellten Genen, die möglichst deutliche Aktivitätserhöhungen nach Bestrahlung zeigen. Sie sollten besser messbare biologische Endpunkte bieten, welche auch praktische Möglichkeiten (Zellzyklus-Kontrolle) eröffnen.

# Projekt

## Molekularbiologische Untersuchungen zur zellulären Radiosensitivität

Autor und Koautoren	Anne Anstett, Carine Chastel, Kurt Ballmer, Josef Jiricny und Rolf Jaussi
beauftragte Institution	Institut für Medizinische Radiobiologie der UNIZH und des PSI
Adresse	Bau OFLG/121
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2877, rolf.jaussi@psi.ch, <a href="http://www.imr.unizh.ch">http://www.imr.unizh.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	23978/80385
Dauer des Projekts (von – bis)	1.1.2001-31.12.2003

### ZUSAMMENFASSUNG

Das Wachstum der meisten Tumore ist abhängig von der Blutversorgung. Wir haben zum Ziel die Radiosensitivität von Endothelzellen spezifisch in Tumorblutgefässen zu erhöhen. Dadurch ist eine Verbesserung der Radiotherapie von Tumoren zu erwarten und wir erhalten grundlegende Daten zur Radiosensitivität von Endothelzellen. Wir streben als Zielvorgabe eine Kombination von Gentherapie mit Radiotherapie an. Mit diesem langfristigen Projekt möchten wir einen strahleninduzierbaren Promoter entwickeln.

Gemäss den Erfahrungen der ersten zwei Jahre war es uns nicht möglich, einen der 5 ursprünglich gewählten Promotoren reproduzierbar um mehr als einen Faktor 2-3 zu induzieren. Wir erachten diese geringe Induktion als problematisch für das Vorhaben und haben deshalb die Suche nach geeigneten Promotor mit einer globalen Analyse der Genexpression in bestrahlten Endothelzellen begonnen. Eine Serie von Microarray-Analysen der Expression von 12'500 Genen pro Chip wurde mit einer Reihe von verschiedenen behandelten und unterschiedlich intensiv bestrahlten menschlichen, primären mikrovaskulären Endothelzellen und der endothelialen Zelllinie EA.hy926 durchgeführt. Die Vorexperimente vom letzten Jahr haben gezeigt, dass die höchste beobachtete Konzentrationszunahme einer mRNA etwa das Dreifache des Kontrollniveaus erreicht hat. Diese Beobachtung galt für alle untersuchten Bedingungen (1-9 Gy 300 kV Röntgen; 1, 6, 12 und 24 h nach Bestrahlung) und mit beiden untersuchten Zelltypen. Wir haben die Analyse nun auch auf mit höheren Dosen (20 Gy) bestrahlte Zellen ausgedehnt. Die Daten aller *GeneChip*-Experimente werden momentan mit Hilfe von erfahrenen Bioinformatikern und Biostatistikern ausgewertet. Zur genaueren Untersuchung der molekularen Mechanismen, welche der Toxizität niedriger Strahlendosen zugrunde liegen, vergleichen wir die Transcriptom-Daten mit den Proteom-Analysen der bestrahlten Zellen. Trotz der geringen Effekte der niedrigen Dosen auf dem transkriptionellen Niveau sind verschiedene Veränderungen auf dem Niveau des Proteoms schon kurz nach der Bestrahlung gut messbar.

## Projektziele

**Bedeutung des Projekts:** Wir möchten ein strahleninduzierbares Gen identifizieren, das zur Expression und Sekretion von toxischem Protein in bestrahlten Zellen führt. Dieses toxische Protein sollte das Gewebe lokal beschädigen und damit die Radiotherapie von Tumoren unterstützen. Die Studie ist auch von grundlegendem radiobiologischem Interesse.

**Ziel für 2001:** Charakterisierung eines ausgewählten Serum-Response-Elements.

**Ziel für 2002:** Charakterisierung von mindestens einem weiteren Promoter auf seine Eignung zur Unterstützung der Radiotherapie. Bei positivem Befund erste Ergebnisse mit der Expression eines toxischen Proteins.

**Ziel für 2003:** Globale Analyse des menschlichen Transkriptoms mit Hilfe der Gene Chip Technologie. Identifizierung von endogenen Strahlung-induzierbaren Promotoren. Eine Studie zum Verständnis der molekularen Ereignisse bei der Auslösung der Apoptose in bestrahlten Zellen wird angestrebt.

**Ziel für 2004:** Vervollständigen der Analyse der Bioinformatikdaten der Transcriptom-Experimente. Analyse der Genprodukte (Proteom), welche aktiviert/modifiziert sind nach ionisierender Bestrahlung. In beiden Studien wird der Bereich der niedrigen Dosen besonders genau studiert. Analyse synthetischer, IR-induzierbarer Promotoren wie derjenige mit tandemartigen Wiederholungen des Bindungsmotivs des Stress-Faktors NF $\kappa$ B.

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### Resultate mit Microarray-Analyse der Genexpression in Endothelzellen

Wir verwendeten primäre mikrovaskuläre Endothelzellen in verschiedenen Wachstumszuständen und nach verschiedenen hohen Strahlendosen bei der Suche nach strahleninduzierbaren Promoter. Zwei menschliche Zelltypen wurden verwendet: primäre menschliche mikrovaskuläre Endothelzellen (HMVEC) und die primäre immortalisierte menschliche Nabelschnur-Venen-Endothel-Zelllinie EA.hy926.

Die Zellen wurden in Endothelzellen-Medium bis zur Konfluenz gebracht und zwei Tage nach Erreichen der Konfluenz bestrahlt. Diese Zellen befanden mehrheitlich in der G<sub>0</sub>-Phase des Zellzyklus. Dieselben Zellkulturen wurden auch verdünnter auf die Kulturschalen gegeben und vor Erreichen der Konfluenz als exponentiell wachsende Zellpopulation bestrahlt.

In beiden Wachstumszuständen fanden wir eine grössere Anzahl strahleninduzierter Gene. Interessanterweise erreichte keine der Induktionen mit messbarer Expression auf dem Kontrollchip mehr als den dreifachen Untergrund. Dieser Befund ist vermutlich umfassend; die Chips analysieren je 12'500 Gene.

Aufgrund solcher Befunde wollten wir die Frage prüfen, ob Kontakte zwischen den Zellen und der extrazellulären Matrix die Strahlensensitivität der Gene beeinflussen. Deshalb ermittelten wir Bedingungen unter welchen die Endothelzellen als Kapillargefässe wachsen, d.h. Röhren (tubes) bilden. Wir erreichten Bedingungen in denen die Zelle zu ca. 50% als Einzellschicht (Monolayer) und zu 50 % als Kapillaren wuchsen. Diese Kulturen wurden bestrahlt und für RNA-Extraktion verwendet, gefolgt von einer Analyse ihrer Genexpression mittels Chip Technologie. Wiederum erhielten wir dasselbe Resultat: keine starke Induktion irgendwelcher Gene. Sämtliche Zellen und Behandlungen, welche anschliessend mit Chiptechnologie analysiert wurden, sind zum Teil in der Tabelle im „Jahresbericht 2002“ dargestellt. Die Resultate dieser ersten Mikroarray-Chips sind nun einer verfeinerten Analyse unterzogen worden (Abb. 1):

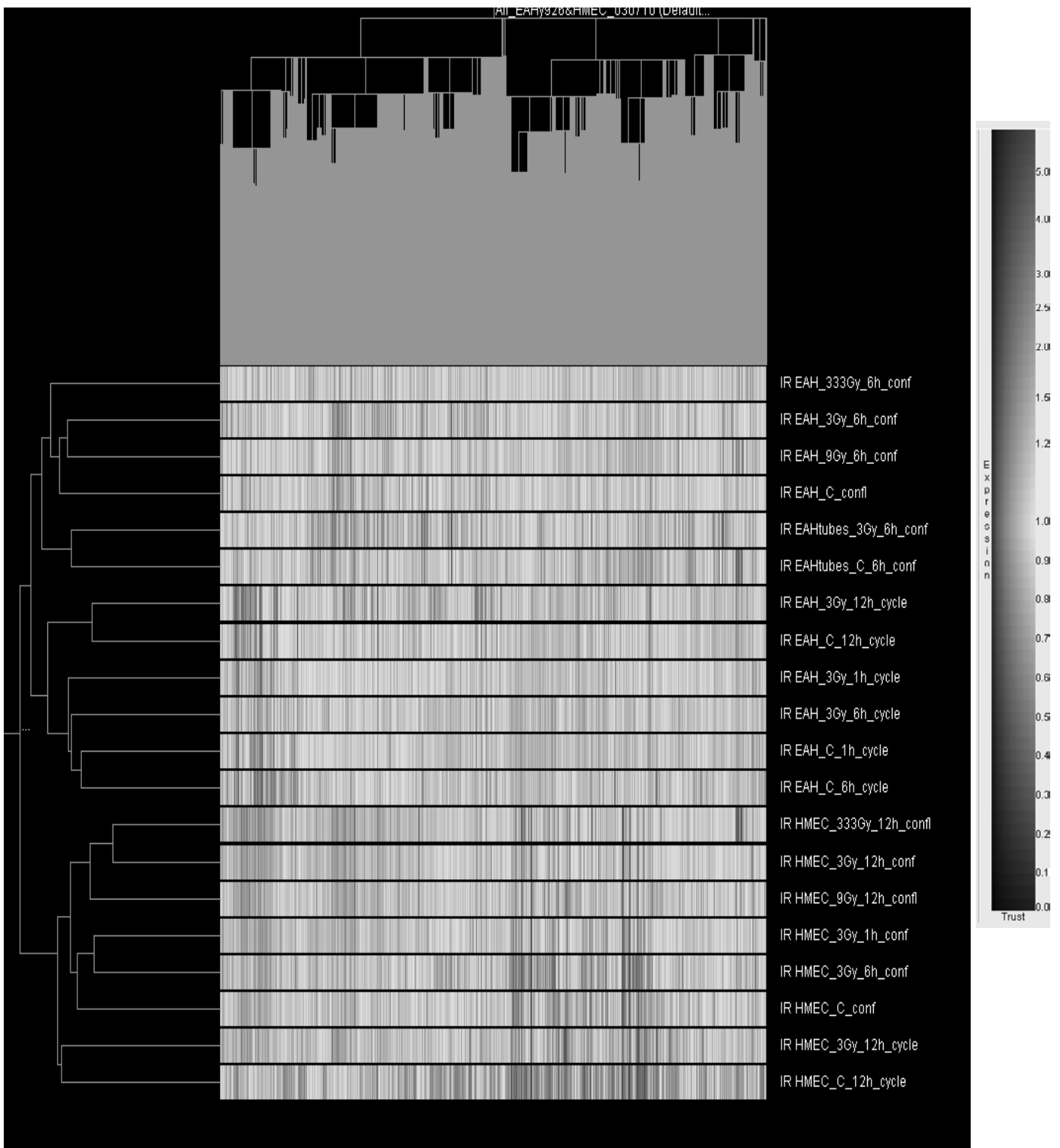


Abb. 1: Mit der GeneSpring Software konstruierter *Clustering tree* für ausgewählte modulierte Gene. 3303 Gene aus total 12626 Genen wurden ausgewählt aufgrund der Hybridisierungsspezifität "Present genes", welche mindestens in der Hälfte der Proben auftrat. Der *Clustering tree* zeigt durch Bestrahlung ("3Gy", fractionated "3+3+3Gy" or "9Gy") modulierte Gene verglichen mit Genen aus schein-bestrahlten Proben ("C"), zu verschiedenen Zeitpunkten (1h, 6h and 12h), in verschiedenen Wachstumsphasen (konfluent ("conf"), im Zellzyklus ("cycle") or Kapillaren-ähnliches Wachstum ("tube")) und in den zwei menschlichen Endothelzellen EA.hy926 and HMEC. Das Programm bildet Cluster gemäss ähnlicher Expressionsmuster (vertikal) und Ähn-

lichkeiten zwischen den Proben (horizontal). Stark überexprimierte Gene: rot; stark unterexprimierte Gene: blau.

Im zweiten Experiment untersuchten wir die Effekte der Strahlung auf das Transkriptom der Ea.Hy926-Zelllinie. Als positive Kontrolle wurde mit 20 Gy bestrahlt; zudem wurden Dosen von 3, 3x3 and 9 Gy wie in den früheren Experimenten gegeben. Die Experimente mit 3 Gy wurden im Triplikat durchgeführt. Abbildung 2 zeigt ausgewählte Gene mit signifikanter Modulation nach 3 Gy über die Beobachtungszeiten von 1h, 6h und 12h.

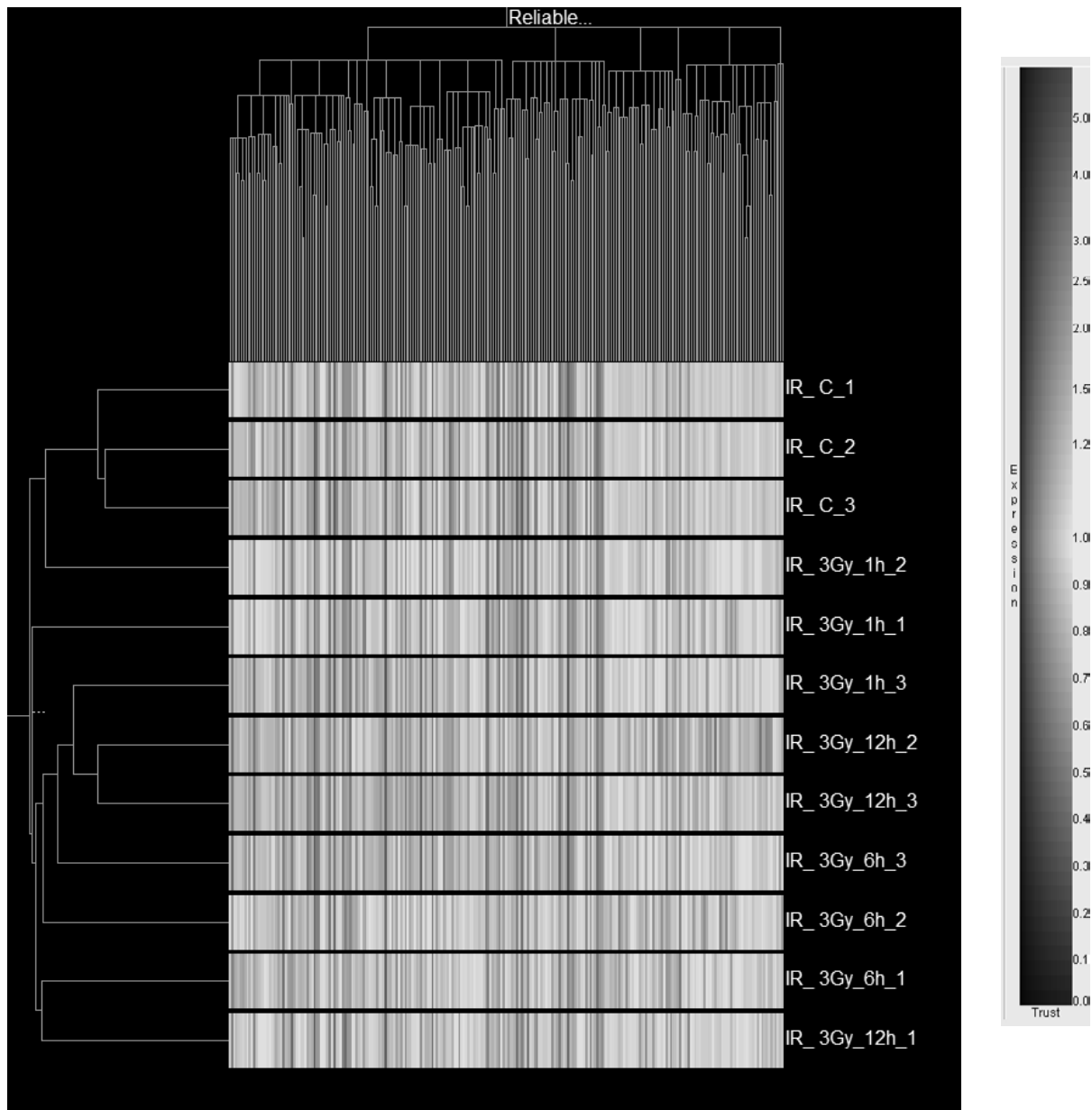


Figure2: Abb. 1: Mit der GeneSpring Software konstruierter *Clustering tree* für ausgewählte modulierte Gene nach 3 Gy in konfluenten EA.hy926 Zellen. Aus total 12626 Genen des Chips, waren 249 im *Clustering tree* als "Present genes" in über der Hälfte der Proben nach dem statistischen T-test mit einem p-Wert von kleiner als 0.05 vorhanden.

Auch in dieser Zelllinie fanden wir nur geringe transkriptionelle Induktion und konnten deshalb keine zeitlich Auflösung der Induktion darstellen. Es sind jedoch schon bedeutende biologische Effekte aufgrund sehr geringer Gen-Induktionen gefunden worden ([1], [2]).

Wir haben deshalb den Promoter eines der induzierten Gene, BTG2, in einem Reporter-Assay studiert. Mit transienten Transfektionen konnten wir keine Induktion des Promotors auf dem verwendeten Plasmid feststellen. Offenbar sind mehr Elemente zur Induktion des Promotors nötig, als die im Plasmid vorhandenen. Eines dieser Elemente ist das p53-Protein, das in bestrahlten Zellen induziert wird. Wir untersuchten daher die Menge und die Phosphorylierung von p53 in den unterschiedlich behandelten Zellen. Das p53-Protein war in Zellen bei 9 Gy und 20 Gy Bestrahlung nach 6h und 12h erhöht, jedoch nicht bei niedrigeren Dosen. Das p21 Cip1/WAF1-Protein, ein Zielprotein des p53-Transkriptionsfaktors zeigt auch bei den niedrigen Dosen erhöhte Expression nach 6 and 12h. Deshalb ist anzunehmen, dass p53 nach niedrigen Dosen wohl etwas zunimmt, was wir aber auf den Western Blots aus Sensitivitätsgründen nicht messen können. Post-translationale Modifikationen auf den ATM- und Chk2-Proteinen wurden zu frühen Zeitpunkten nach Bestrahlungen gefunden (Abb. 3).

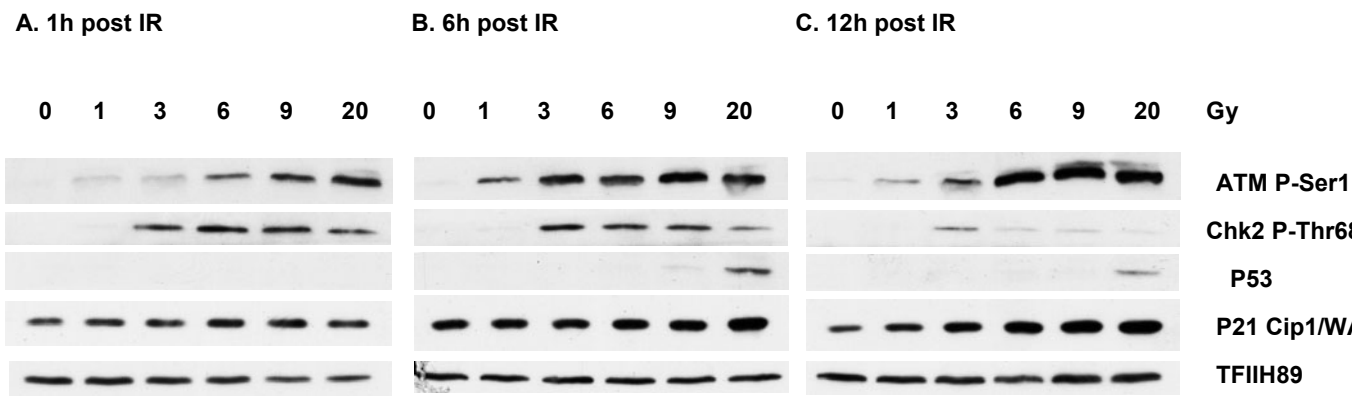


Abb. 3: Western Blots von konfluenten EA.hy926 Zellen. Das p53-Protein nimmt nach 9 Gy und 20 Gy zu (B und C). Stimulation von p21 Cip1/WAF1 (B und C), Phosphorylierung von Chk2-Protein an T68 und von ATM-Protein an S1981 nach IR (A, B and C). TFIIH p89: Ladekontrolle.

## Nationale Zusammenarbeit

Dieses Projekt wurde in Zusammenarbeit mit dem Functional Genomics Center Zurich ([www.fgc.unizh.ch](http://www.fgc.unizh.ch)) durchgeführt.

## Internationale Zusammenarbeit

## Bewertung 2003 und Ausblick 2004

Mittels cDNA Mikroarray-Technologie konnten wir Modulation der Genexpression in Endothelzellen nach ionisierender Bestrahlung zeigen. Die geringe Induktion der Genexpression bei Dosen, welche im therapeutischen Bereich Verwendung finden (1-3 Gy), erlaubte uns nicht, einen für Radiotherapie geeigneten natürlichen Promotor zu finden. Die enorme Datenmenge, die bei diesen Versuchen entstanden ist, hat sich jedoch als äusserst nützlich dazu erwiesen, unser Verständnis der Effekte niedriger Strahlendosen zu verbessern. Wir werden nun die gewonnenen Daten weiter und

vertiefter untersuchen, mit dem Zweck doch noch Faktoren zu identifizieren, welche für eine Radiotherapie relevant sein könnten.

In parallelen Versuchen befassen wir uns mit Untersuchungen mit Stress-induzierbaren Genen, welche den Transkriptionsfaktor NF- $\kappa$ B binden und die in mehrfacher Wiederholung in einem synthetischen Promotor hinter einander liegen. In unseren vorläufigen Experimenten haben wir signifikante Induktion des Promotors durch IR gefunden, hatten aber Probleme mit der Reproduzierbarkeit der Resultate. Wir gehen nun trotz des grossen notwendigen Zeitaufwands zum Studium stabil transformierter Zelllinien über.

Wir möchten auch Zelllinien mittels Überexpression des Kontrollpunktgens CHK2 gegenüber Bestrahlung sensitivieren. Das Protein des CHK2 Gens ist wichtig für die Blockierung des Zellzyklus in der G2-Phase, wobei es in bestrahlten Zellen durch die ATM-Kinase phosphoryliert wird (vgl. Abb. 3). Wir nehmen an, dass Überexpression des CHK2-Proteins zu seiner vermehrten Kinasierung durch ATM führt und dass damit der zum G2-Block notwendige Schwellenwert der aktiven CHK2-Kinase rascher und bei niedrigeren Strahlendosen überschritten wird.

## Referenzen

[1] S.A. Amundson, R.A. Lee, C.A. Koch-Paiz, M.L. Bittner, P. Meltzer, J.M. Trent, A.J. Fornace. **Differential Responses of Stress Genes to Low Dose-Rate  $\gamma$  Irradiation.** Molecular Cancer Research 1: 445-452, 2003

[2] S.A. Amundson, A.J. Fornace. **Induction of stress genes by low doses of gamma rays.** Radiat Res. 152(3): 225-31, 1999





Datum: 11. März 2004

Von: R. Scheidegger

## **Begutachtung 2003 für das Projekt „Evaluation einer kombinierten Therapie mit Tumervaskulatur-spezifischen Reagentien und ionisierender Strahlung“**

### **Einleitung**

Ein Tumor benötigt für das Wachstum eine gute Blutversorgung. Somit ist es wichtig, dass kontinuierlich neue Blutgefäße gebildet werden. Ein möglicher Ansatz für eine Therapie ist, durch die Zugabe von Substanzen, die spezifisch die Tumor-Blutgefäße angreifen, einen Tumor von seiner Blutzufuhr abzuschneiden. Beim Vorgang der Gefässneubildung spielt unter Anderem auch das Eiweiss-Hormon Vascular Endothelial Growth Factor (VEGF) eine wichtige Rolle. Dieser Ansatz setzt voraus, dass die eingesetzten zytotoxischen (zelltötenden) Stoffe gezielt in die Zellen der Blutgefäße eindringen.

Im beschriebenen Projekt werden dazu als biologische „Transportgefäße“ Liposomen eingesetzt. Dies sind Hohlkugeln, deren Hülle aus einer Doppelschicht von Fettsäuremolekülen besteht. Das wässrige Innere kann als Raum für die zu transportierende Substanz verwendet werden. Damit die Liposomen möglichst nur in die gewünschten Zielzellen eindringen, kann ihre Hülle noch mit Teilen von geeigneten Antikörpern versetzt werden. Eine negative Nebenwirkung ist jedoch eine zu hohe Anreicherung in der Leber und in der Milz. Diese Anreicherung steht auch in Zusammenhang mit der Anzahl Antikörper pro Liposom.

Um die Anzahl von Antikörpern pro Liposom einzugrenzen, wurden im vorliegenden Projekt mit Hilfe einer eigens entwickelten Methode Liposomen mit einer definierten Anzahl Antikörper hergestellt.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Die Methode zur Herstellung und Reinigung der Antikörper, sowie ihr Einbau in die Liposomen konnte etabliert werden. Es konnte nachgewiesen werden, dass die Verteilung der veränderten Liposomen im Vergleich zu nicht-modifizierten Kontrollliposomen, verbessert ist.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Bedeutung ist natürlich vor Allem für die moderne Tumorthherapie sehr wichtig, wo es gilt, eine Geschwulst gezielt abzutöten oder sie gezielt strahlenempfindlich zu machen. Die Methode ist aber auch für jeden anderen Einsatz von Wichtigkeit, wo bioaktive Substanzen in ausgewählte Zielzellen befördert werden müssen. Denkbar ist auch ein Einsatz nach Strahlenunfällen mit dem Ziel, eine Regeneration von strahlengeschädigten Geweben zu erreichen.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Nach Erfüllung der wichtigen Vorbedingungen (siehe Punkt 2) können nun die therapeutischen Tests auch in Kombination mit einer Bestrahlung durchgeführt werden.

# Projekt

## Evaluation einer kombinierten Therapie mit Tumorstromabundatur-spezifischen Reagentien und ionisierender Strahlung

Autor und Koautoren	Kurt Ballmer-Hofer, Cornelia Marty
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	OFLC 102
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 3104165, <a href="mailto:kurt.ballmer@psi.ch">kurt.ballmer@psi.ch</a> , <a href="http://imr.web.psi.ch/imr_psi_homepage.html">http://imr.web.psi.ch/imr_psi_homepage.html</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	
Dauer des Projekts (von – bis)	Juli 2003 – Juni 2006

### ZUSAMMENFASSUNG

Unser Projekt zielt darauf ab, Wirkstoffe organspezifisch in Tieren an ihren Zielort zu bringen. Dabei verwenden wir Liposomen als Tragervehikel, die durch Modifikation mit speziellen Molekulen wie z.B. Antikorpere in der Lage sind, ihr Ziel im lebenden Tier anzusteuern. Liposomen konnen mit einer Vielzahl von Komponenten, wie z.B. Radionukliden oder zytotoxischen Substanzen, beladen werden. Sie werden dann als therapeutisch oder diagnostisch anwendbare Vehikel eingesetzt.

Eine Serie von Antikorperfragmenten, sog. single chain Fv Fragmente (scFV), die in einem Screen einer Phagenbibliothek isoliert wurden, sind fur unser Projekt als Targetingmolekule bereitgestellt worden. Dabei wurden speziell Antikorper isoliert, die Eiweisse, die in der Tumorstromabundatur stark exprimiert werden, erkennen. Die Antikorper erkennen Endothelzell spezifische Rezeptormolekule, z.B. VEGF Rezeptor 2 oder den Tumorendothelmarker 1 respektive Komponenten der extrazellularen Matrix, wie z.B. Fibronectin. Diese Molekule werden speziell von den Endothelzellen in Blutgefassen auf der Oberflache exprimiert.

Die Produktion dieser scFv in einem Hefeexpressionssystem im mg Massstab ist gut etabliert und verschiedene Antikorper wurden in grossen Mengen hergestellt und charakterisiert.

Die Methoden zur Kopplung dieser Antikorper an Liposomen wurde ebenfalls optimiert und es konnen nun modifizierte Liposomen in grosseren Mengen fur Tierversuche hergestellt werden.

Schliesslich wurden die Methoden zur Beladung der Liposomen mit zytotoxischen Reagentien oder Radionukliden etabliert und an Zellen und in Tieren getestet. Erste Versuche in Mausen zur Untersuchung der Verteilung solcher Liposomen auf die verschiedenen Organe wurden durchgefuhrt.

## Projektziele

Die Neubildung und Erhaltung von Blutgefäßen ist ein komplexer Prozess, der das Zusammenspiel einer Vielzahl zellulärer Botensubstanzen erfordert. 'Vascular endothelial growth factor' (VEGF) ist ein Peptidhormon, das eine wesentliche Rolle in diesem Prozess spielt und auch in der Klinik von Relevanz ist. Auch beim Wachstum von Tumoren ist die Bildung neuer Blutgefäße wichtig, werden im allgemeinen doch nur gut durchblutete Tumoren eine klinisch relevante Größe erreichen. Die Entwicklung von Therapien, mit deren Hilfe die Tumervaskulatur angegriffen und zertört oder zumindest stark geschädigt werden kann, ist eine vielversprechende Methode der Tumorbekämpfung. Dabei werden therapeutisch wirksame Reagentien spezifisch in die Tumervaskulatur geschickt. Eine Vielzahl von Oberflächenmolekülen, die auf der Tumervaskulatur exprimiert werden, bietet sich als Ziel für eine solche Therapie an.

Im laufenden Projekt soll eine kombinierte Therapie mit zytotoxischen, Tumervaskulatur-spezifischen Reagentien, und ionisierender Strahlung in einem Mausmodell evaluiert werden. Dabei soll die besondere Empfindlichkeit der Tumervaskulatur bei der Bestrahlung therapeutisch genutzt werden. Eine gezielte Behandlung solcher Endothelzellen mit Liposomen, die die Tumervaskulatur aufgrund spezieller Oberflächenmarker, eben z.B. der Rezeptoren für VEGF, erreichen, wird angestrebt. Die Liposomen werden mit zytotoxischen Substanzen beladen, die das Tumorstadium sowie das Wachstum der Tumervaskulatur blockieren, respektive deren Radioempfindlichkeit erhöhen.

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### Verteilung von $^{67}\text{Cu}$ beladenen Immunliposomen in Mäusen

Liposomen sind kugelförmige Vehikel aus einer Lipiddoppelschicht die eine wässrige Phase umhüllt. Sie werden zum Transport verschiedener Reagentien, wie z.B. Zytostatika, in ein spezielles Organ oder in Tumorgewebe verwendet. Mittels Modifizierung der Liposomen mit Antikörpern oder Antikörperfragmenten (scFv) kann ihre Spezifität verbessert werden. Durch diesen Vorgang wird aber leider auch ihre Anreicherung in der Leber und Milz erhöht. Deshalb ist das Gleichgewicht zwischen Tumor und Leber/Milz Aufnahme, also das sogenannte therapeutische Fenster, ein wichtiger Parameter für eine erfolgreiche Therapie. Dabei spielt die Anzahl Antikörper pro Liposom eine wichtige Rolle. Um die Verteilung der Liposomen zu optimieren, haben wir in unserem Labor Methoden entwickelt, die es uns erlauben Immunliposomen mit definierter Anzahl scFv herzustellen.

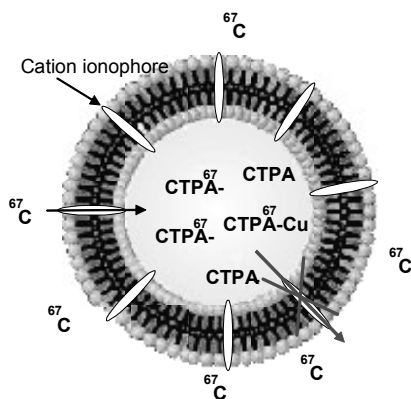
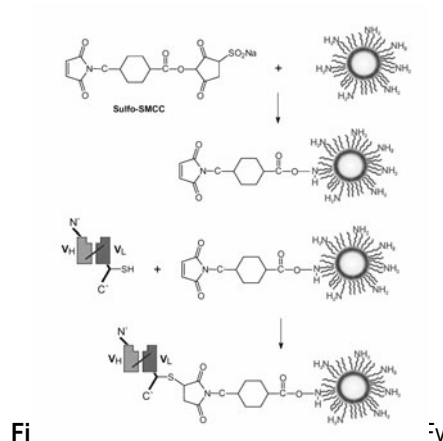


Fig. 1 Beladen von Liposomen mit  $^{67}\text{Cu}$



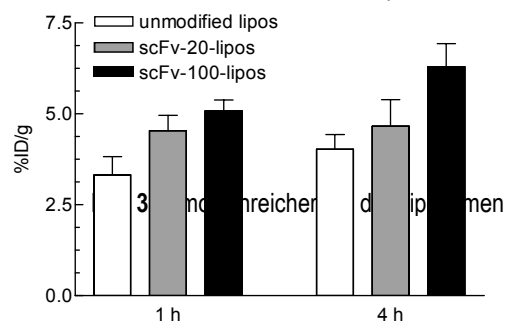
Fi

Fi

Mittels einer Extrusionmethode wurden Liposomen mit einem Durchmesser von 100 nm in 10 mM CTPA (4-(1,4,8,11-tetraazacyclotradec-1-yl)-methyl benzoic acid tetrachlorid) Puffer hergestellt. Neben dem Phosphatidylcholin und Cho-

lesterol enthalten die Liposomen einen Ionophor zur Beladung mit Metallionen wie z.B.  $^{67}\text{Cu}$ . Die Liposomen sind mit Polyethylenglycol zur optimalen Verteilung im Blut sowie endständigen Aminogruppen zur Modifizierung mit scFv modifiziert. Nicht eingeschlossenes CTPA wurde anschliessend durch Dialyse entfernt. Die radioaktive Markierung der Liposomen erfolgte durch Inkubation mit  $^{67}\text{Cu}$ . Das  $^{67}\text{Cu}$  dringt durch den Ionophor ins Liposom ein und bildet mit dem Chelator CTPA einen stabilen hochmolekularen Komplex, welcher das Liposom nicht mehr verlassen kann (Fig. 1). Die scFv wurden in Hefe mit einer Ausbeute von 5-10 mg/l produziert und über eine Protein A Affinitätssäule gereinigt. Die Liposomen wurden gemäss Fig. 2 mit Liposomen modifiziert. Die Anzahl scFv per Liposom wurde bestimmt, indem der scFv mit einem Fluoreszenzfarbstoff markiert wurde. Die Lipidkonzentration wurde über die Bestimmung des Phosphatgehaltes der Liposomen gemessen. Mit Hilfe dieser in unserem Labor entwickelten Methoden konnten nun Liposomen mit 20 resp. 100 scFv pro Liposom hergestellt werden.

ScFv modifizierte und unmodifizierte  $^{67}\text{Cu}$  beladene Liposomen wurden intravenös in Sv129 Mäuse mit subcutanen F9 Tumoren gespritzt. Nach verschiedenen Zeitpunkten wurden die Mäuse getötet, ihre Organe und Tumore entnommen und die Radioaktivität gemessen. Wie in Fig. 3 ersichtlich, ist die Tumoraufnahme abhängig von der Anzahl scFv pro Liposom. Im weiteren konnten mit dieser neu entwickelten Liposomenherstellung die Milzaufnahme erniedrigt werden.



In einer Diplomarbeit an unserem Institut (Meylan 2003) wurde ausserdem gezeigt, dass spezielle Peptidsequenzen, sog. Proteintransduktionsdomänen, PTD, die Aufnahme von Liposomen in lebende Zellen stark beschleunigen.

## Nationale Zusammenarbeit

Prof. H. Pichler, Dr. O. Engler, Prof. A. Cerny\*,  
Klinik für Rheumatologie und  
klinische Immunologie/Allergologie  
Inselspital  
3010 Bern

\* Ospedale Civico, Via Tesserete, 6903 Lugano

Entwicklung liposomaler Peptidvakzine gegen Hepatitis C

## Internationale Zusammenarbeit

Prof. H. Schott,  
Inst. für Org. Chemie,  
Universität Tübingen,  
Auf der Morgenstelle 18,  
D-72076 Tübingen

Entwicklung von neuen lipophilen zytostatischen Verbindungen und deren Formulierung in Liposomen

Ellis L. Reinherz MD  
Professor of Medicine  
Harvard Medical School  
Chief, Laboratory of Immunobiology  
Dana Farber Cancer Institute  
44 Binney St.  
Boston, Mass. USA 02115

Phone 617-632-3412  
Fax 617-632-3351

## Bewertung 2003 und Ausblick 2004

Die bisherigen Daten zeigen, dass die Methoden zur Herstellung und Reinigung von **scFv** im Labor gut etabliert sind und die Antikörper in ausreichenden Mengen für Tierexperimente gereinigt werden können. Die Daten zeigen auch, dass die Modifikation der Liposomen mit Antikörpern funktioniert und die Verteilung der Immunliposomen in Tumor tragenden Tieren gegenüber Kontrollliposomen verbessert ist. Die nächste Serie der Tierexperimente wird nun zeigen, ob ein verbesserter therapeutischer Effekt mit Antikörper modifizierten Liposomen erreicht werden kann und ob eine gleichzeitige Bestrahlung der Tumoren den Therapieerfolg zusätzlich verbessert.

## Referenzen

- [1] Console, S., Marty, C., Garcia-Echeverria, C., Schwendener, R., and Ballmer-Hofer, K. Antennapedia and HIV TAT 'protein transduction domains' promote endocytosis of high Mr cargo upon binding to cell surface glycosaminoglycans. *J.Biol.Chem.*, 278: 35109-35114, 2003.
- [2] Marty, C., Scheidegger, P., Ballmer-Hofer, K., Klemenz, R., and Schwendener, R. A. Production of Functionalized Single-Chain Fv Antibody Fragments Binding to the ED-B Domain of the B-isoform of Fibronectin in *Pichia pastoris*. *Protein Expr.Purif.*, 21: 156-164, 2001.
- [3] Marty, C., Odermatt, B., Schott, H., Neri, D., Ballmer-Hofer, K., Klemenz, R., and Schwendener, R. A. Cytotoxic targeting of F9 teratocarcinoma tumours with anti-ED-B fibronectin scFv antibody modified liposomes. *Br.J.Cancer*, 87: 106-112, 2002
- [4] Meylan-Gonin, C. (2003) Enhanced cell uptake of cell penetrating peptide modified liposomes, ETH Zürich und MCB am Paul Scherrer Institut, Villigen.

**Internetsite des Forschungsprogramms [http://imr.web.psi.ch/imr\\_psi\\_homepage.html](http://imr.web.psi.ch/imr_psi_homepage.html). Rubrik „Research“.**



Datum: 11. März 2004

Von: F. Cartier

## **Begutachtung 2003 für das Projekt „Zusammenarbeit in der Dosimetrie“**

### **Einleitung**

Die Personendosimetrie der äusseren und inneren Strahlenexposition ist eine wichtige Aufgabe des Strahlenschutzes. Die Dosimetrieverordnung stellt hohe technische Anforderungen an die Dosimetriestellen. Erhebliche Bedeutung haben auch die Messungen zur Freigabe von Materialien aus der kontrollierten Zonen und zur Überwachung der Abgaben radioaktiver Stoffe an die Umgebung. Die Sektion Messwesen der Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit des PSI ist vom Bundesamt "metas" als akkreditierte Stelle zugelassen und befasst sich mit Fragen zur Eichung und Kalibrierung von Dosimetriesystemen und Strahlenmessgeräten wie beispielsweise Oberflächenkontaminationsmessgeräten. Die vorliegende Vereinbarung ermöglicht der HSK Expertisen sowie Entwicklungs- und Forschungsarbeiten im Gebiet der Strahlenmesstechnik durchführen zu lassen.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Abgeschlossen wurde die Evaluation eines Kontaminationsmonitors für Nuklidgemische, wie sie bei Kontrollmessungen der HSK von als inaktiv frei gegebenen Materialien auftreten können. Die umfangreichen Kalibrierungen und Berechnungen der Nachweisgrenzen zeigten, dass die geforderten Eichfehlergrenzen von  $\pm 50\%$  bei einigen Geräten für die Nuklide  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{90}\text{Sr}$  zugleich eingehalten werden können. Die Untersuchungen geben auch wichtige Hinweise für den Einsatzbereich der verschiedenen Kontaminationsmonitore.

Der Projektbegleiter beurteilt auch den Arbeitsfortschritt in den andern Teilprojekten als gut. Bei den Personendosimetern für Neutronen wurden weitere Messungen in praktisch vorkommenden, gemischten Neutronen-Photonen Strahlenfelder und an Bestrahlungseinrichtungen der PTB durchgeführt. Die Freimessungen von Materialien ermöglichten weitere Erfahrungen für die Kalibrierung von Freimessanlagen, die für die weiteren Rückbauarbeiten an den Forschungsreaktoren bedeutend sind. Im Teilprojekt "Entwicklung einer Methode zur Bestimmung der Aerosolverluste in komplexen Probenahmesystemen" sind geeignete Messmethoden und Geräten evaluiert und getestet worden.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die in den Teilprojekten formulierten Fragestellungen sind nach wie vor aktuell. Die Neutronendosimetrie ist für den praktischen Strahlenschutz bei Transporten von abgebrannten Brennelementen von Bedeutung. Dieses Teilprojekt ist in das internationale Projekt EVIDOS des EU-Forschungsprogramms eingebettet. Die in Entwicklung stehenden Kalibrierverfahren erleichtern die im Aufsichtsbereich der HSK anstehenden messtechnischen Beurteilungen wesentlich.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die Vereinbarung mit dem PSI ist um 3 Jahre verlängert worden und endet am 31. Dezember 2006.

# Projekt

## Zusammenarbeit in der Dosimetrie

Autor und Koautoren	Ch. Schuler, M. Boschung, G. Butterweck und C. Wernli
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056/310 28 78; christoph.schuler@psi.ch; <a href="http://www.psi.ch">http://www.psi.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	DIS Nr. 80086
Dauer des Projekts (von – bis)	1. Jan. 2001 - 31. Dez. 2003

### ZUSAMMENFASSUNG

Das Forschungsprojekt „Zusammenarbeit in der Dosimetrie“ hatte 2003 die folgenden Schwerpunkte:

In der Neutronendosimetrie werden durch die Teilnahme am EU-Projekt EVIDOS und durch aktive Entwicklungszusammenarbeit wertvolle Erkenntnisse für dieses komplexe Teilgebiet der Dosimetrie gewonnen. Ziel ist nach wie vor die Sicherstellung des Informationsstandes zu „state of the art“ in der Neutronendosimetrie.

Die Einrichtung eines Kompetenzzentrums an der Sektion Messwesen des PSI für die Überprüfung von Raum- und Abluftanlagen konnte erfolgreich vorangebracht werden. Ziel ist die Bestimmung von Aerosolverlusten in komplexen Leitungssystemen.

Erste Erfahrungen mit der Umsetzung der HSK-Richtlinie R-13 sind bezüglich Freimessmethodik gemacht worden. Sie werden die Qualität weiterer Freimesskampagnen im Zusammenhang mit Rückbauten des PSI erhöhen.

## Projektziele

### Grundsätzliches Ziel des Projekts

Gemäss Vereinbarung vom 1. Jan. 2001 ist das grundsätzliche Ziel dieses Forschungsprojektes, mit geeigneten Studien, Entwicklungsarbeiten sowie Messkampagnen auf eine Verbesserung der Dosimetrie hinzuwirken, wobei diese Arbeiten durch die Sektion Messwesen des PSI in enger Zusammenarbeit mit der HSK zu leisten sind.

### Geplante Teilprojekte

Im Rahmen des Forschungsprojektes sollten im Jahr 2003 die folgenden Teilprojekte bearbeitet werden:

Nr	Teilprojekt	Ziel
01/3	Laufende Berichterstattung über die internationale Normentätigkeit im Strahlenschutz, insbesondere bei IEC und ISO	Orientierung der HSK; Mitarbeit bei Neugestaltung oder Revisionen von Normenwerken
01/4	Weiterentwicklung elektronischer Neutronendosimeter auf Basis von Direct Ion Storage (DIS) und Berichterstattung über das EU-Projekt EVIDOS	Einbringen der Erfahrungen und Prüfmöglichkeiten von Anwenderseite in ein industrielles Entwicklungsprojekt; Gewährleistung und Aufrechterhaltung des Informationsstandes zu „state of the art“ in der Neutronendosimetrie; Gewinn neuer Erkenntnisse durch Teilnahme an einem internationalen Forschungsprojekt
02/1	Kalibrierung (gemäss separater Aufträge an die Sektion) und Überprüfung von Fassmessanlagen in KKW, ZWILAG und PSI ( $\gamma$ -Spektroskopie, $\gamma$ -DL)	Empfindlichkeitsoptimierung durch Kalibrierungen; Gewährleistung der Vergleichbarkeit von Messresultaten
02/2	Entwicklung einer Methode zur Bestimmung von Aerosolverlusten in komplexen Leitungssystemen	Einrichtung eines Kompetenzzentrums für die Überprüfung von Raum- oder Abluftüberwachungsanlagen
02/3	Ad hoc Evaluation eines tragbaren Oberflächenkontaminationsmonitors für die HSK	Eruieren eines für komplexe Messaufgaben bestgeeigneten Geräts
03/1	Umsetzung der R-13 an den Beispielen Rückbau Diorit und Saphir (Methodisches Vorgehen: Kalibrierung des FMS, Messmethodik und Qualitätssicherung)	Optimierung der für das Freimessen einzusetzenden Messmethodik, insbesondere für Messgut in Form von grossen Massen Schüttgut.



## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### Übersicht Stand der Arbeiten

Teilprojekt	Abgeschlossen mit Bericht	Zurzeit in Bearbeitung (Einzelheiten in den entsprechenden Abschnitten)
<b>01/3</b>		X
<b>01/4</b>		X ([1],[2])
<b>02/1</b>		X
<b>02/2</b>		X
<b>02/3</b>	[3]	
<b>03/1</b>		X ([4])

**01/3** Laufende Berichterstattung über die internationale Normentätigkeit im Strahlenschutz, insbesondere bei IEC und ISO

Im Berichtsjahr wurde die Normentätigkeit bei IEC und ISO aktiv verfolgt. Drei Projekte, bei denen die Sektion Messwesen des PSI direkt beteiligt ist und die die Bereiche Neutronendosimetrie, Personendosimetrie mit DIS und Oberflächenkontaminationsmessungen betreffen, waren im Jahr 2003 Gegenstand von Abstimmungen in den Mitgliedsländern. Deshalb fanden an diesen Dokumenten keine redaktionellen Arbeiten statt.

Die Berichterstattung wird im Jahr 2004 weitergeführt.

**01/4** Weiterentwicklung elektronischer Neutronendosimeter auf Basis von Direct Ion Storage (DIS) und Berichterstattung über das EU-Projekt EVIDOS

Das Hauptziel des EVIDOS-Forschungsprojektes, bei dem 7 Partner beteiligt sind (PTB, IPSN, DIMNP, NRPB, SCK-CEN, SSI, PSI), ist die Überprüfung von verschiedenen Methoden bei der individuellen Dosimetrie in gemischten Neutronen-Photonen-Feldern an Arbeitsplätzen in der Nuklearindustrie. Einerseits sollen die Möglichkeiten und Grenzen von Personendosimetern bestimmt werden. Andererseits sollen auch Methoden erarbeitet werden, welche eine situationsgerechte Bestimmung von effektiven Personendosen aus Messungen durch Spektrometrie, Ortsdosimetrie und Personendosimetrie ermöglichen. Geplant sind Messungen mit verschiedenen aktiven und passiven Systemen an Arbeitsplätzen, die möglichst den vollständigen europäischen Kernbrennstoffzyklus abdecken sollen. Das PSI beteiligt sich am Projekt mit CR39-Dosimetern und den DIS-Neutronen-Dosimetern.

In der abgelaufenen Berichtsperiode wurden die geplanten Messkampagnen in einem Kernkraftwerk und an einem Transportbehälter in Deutschland sowie in einem Brennstoff-Bearbeitungsbetrieb und an einem Forschungsreaktor in Belgien durchgeführt. Die zeitlich begrenzten Bestrahlungsmöglichkeiten an vielen Messorten sowie die schwachen Dosisleistungen ermöglichten leider keine sehr genauen und häufigen Messungen. Die Ergebnisse [1] zeigen, dass mit den CR39-Dosimetern kaum Neutronendosen kleiner als einige 100 mikro-Sievert messbar sind. Bestätigt hat sich, dass - bedingt durch die verwendete Messmethode der Differenzbildung - das DISN-Dosimeter nicht sehr empfindlich ist bei der Messungen einer Neutronendosis bei gleichzeitig vorhandenem hohen Photonenanteil. Bei bekanntem Neutronenspektrum mit relativ kleinem

Photonenanteil steht mit dem DISN-Dosimeter bei Verwendung eines für das Spektrum angepassten, optimierten Radiators jedoch ein einfaches System mit rascher Auswertung und direkter Anzeige der Dosis zur Verfügung.

Im weiteren wurde das Ansprechvermögen der DISN-Dosimeter mit 4 unterschiedlichen Radiator-Konfigurationen sowie der CR-39-Dosimeter für thermische Neutronen und Neutronen im intermediären Energiebereich an den Bestrahlungseinrichtungen der PTB bestimmt [2].

Die Berichterstattung über das bis 2005 angelegte Forschungsprojekt EVIDOS wird im Rahmen dieses Teilprojekts im Folgejahr weitergeführt.

#### **02/1** Kalibrierung (gemäss separater Aufträge an die Sektion) und Überprüfung von Fassmessanlagen in KKW, ZWILAG und PSI ( $\gamma$ -Spektroskopie, $\gamma$ -DL)

Für die ZWILAG standen im Jahr 2003 als Haupttätigkeitsgebiet Testreihen zur Erprobung des Verbrennungsofens im Vordergrund. Aus diesem Grunde kam den vom PSI zu kalibrierenden Messeinrichtungen für Abfallfässer nur untergeordnete Bedeutung zu. Schäden an Detektor und Detektorführungseinrichtung führten zu so gravierenden Betriebsunterbrüchen der Anlage, dass trotz grossen Einsatzes der Sektion Messwesen des PSI die Anlage bis Ende 2003 nicht in einen kalibrierfähigen Zustand gebracht werden konnte.

Im nächsten Jahr soll durch Abklärungen der Herstellerfirma und einen eventuellen Ersatz des Reinstgermanium-Detektors die Fassmessanlage der ZWILAG in einen Stand gebracht werden, in dem sie kalibriert werden kann.

Das Teilprojekt wird 2004 weitergeführt.

#### **02/2** Entwicklung einer Methode zur Bestimmung von Aerosolverlusten in komplexen Leitungssystemen

Das Ziel dieses Teilprojekts ist die Entwicklung einer Methode zur Prüfung von Aerosolverlusten in Probenahmeleitungen. Die Methode soll insbesondere Leitungssysteme einschliessen, bei denen eine direkte Messung der Aerosolkonzentration am Beginn der Probenahmeleitung nicht möglich ist. Hierfür wurde ein Konzept entwickelt, das auf der Doppelmarkierung eines Luftpakets mit fluoreszierenden Aerosolpartikeln definierter Grösse und einem inerten Tracergas basiert. Das Verhältnis von Aerosolkonzentration zu Tracergaskonzentration ist eine von Verdünnungen und Beimischungen unabhängige Messgrösse. Es wird an zugänglichen Orten des Leitungssystems und am Ende der Probenahmeleitung bestimmt. Der Vergleich dieser Messwerte liefert Aufschluss über die Verluste an Aerosolpartikeln für eine wohldefinierte Teilchengrösse. Mit geeigneten Aerosolgeneratoren ist der Einsatz von monodispersen Partikeln im Durchmesserbereich zwischen 0.05 und 50 Mikrometern möglich.

Für das Teilprojekt 02/2 wurden die zentralen Instrumente ( $\text{SF}_6$ -Analysator (Innova) und Aerosolgeneratoren (Topas)) evaluiert und beschafft.

Zur Bestimmung der Anzahl von auf Filtern abgeschiedenen fluoreszierenden Aerosolpartikeln wurde die Methode der Fluoreszenzmikroskopie mit direktem Zählen der Partikel als geeignet ermittelt. Das Filtermaterial muss hierzu eine ausreichend glatte Oberfläche besitzen. Es zeigte sich, dass Zellulosemischester (ZME)-Membranfilter dieses Kriterium bei gleichzeitiger guter mechanischer Belastbarkeit erfüllen. Ein vorhandenes Mikroskop wurde mit an die Fluoreszenzcharakteristik der Partikel angepassten Beleuchtungsquellen (ultrahelle Luxeon Leuchtdioden königsblau) ausgerüstet. Die Bildaufnahme erfolgt über eine handelsübliche Digitalkamera mit geeignetem Farbfilter (B+W Farbfilter 023) und anschliessender numerischer Analyse der Fotos.

Für die Erzeugung beliebiger  $\text{SF}_6$ -Konzentrationen wurde eine Verdünnungsapparatur basierend auf 4 digitalen Massendurchflussreglern (Brooks) aufgebaut. Erste Experimente zur Adsorption von Schwefelhexafluorid an 13X Zeolith konnten in der Literatur beschriebene hohe Adsorptionsraten nicht bestätigen. Aus diesem Grund wurde auf das ursprüngliche Konzept zum Sammeln

von Schwefelhexafluorid durch Adsorption an Aktivkohle (Norit RB2) zurückgegriffen. Nach einer quantitativen Bestimmung der Adsorptionsrate wurden optimierte Adsorptionskartuschen konstruiert. Das an der Aktivkohle adsorbierte SF<sub>6</sub> wird zur quantitativen Bestimmung thermisch desorbiert und in ein bekanntes Volumen überführt. Anschliessend erfolgt eine Konzentrationsmessung mit dem SF<sub>6</sub>-Analysator zur Bestimmung der aufgesammelten Menge an Schwefelhexafluorid.

### **02/3** ad hoc Evaluation eines tragbaren Oberflächenkontaminationsmonitors für die HSK

Verschiedene, zum Teil auch bei KKW, PSI und ZWILAG (noch) nicht im Betrieb stehende Oberflächenkontaminationsmonitore mit Szintillationsdetektor, Xe-gefülltem Proportionalzählrohr und gasgespültem Proportionalzählrohr wurden unter Einbezug von Kalibrierungen und Nachweisgrenzenberechnungen gemäss den Forderungen der HSK an Empfindlichkeit und Nachweisgrenzen evaluiert.

Das Teilprojekt wurde mit einem Bericht [3] abgeschlossen.

### **03/1** Umsetzung der R-13 an den Beispielen Rückbau Diorit und Saphir (Methodisches Vorgehen: Kalibrierung des FMS, Messmethodik und Qualitätssicherung)

Erste Erkenntnisse und Erfahrungen mit der Umsetzung der HSK-Richtlinie R-13 konnten mit der Kalibrierung der Freimessanlage RADOS RTM644Inc, welche gemeinsam von ZWILAG und PSI betrieben wird, für das Freimessen von Abfallleerfässern gewonnen werden [4]. Die Komplexität der Kalibrierung und das für eine brauchbare Kalibrierung notwendige Vorgehen konnten an diesem Beispiel eines Freimessguts sehr gut demonstriert werden. Diese Erfahrungen werden im Folgejahr hilfreich sein, wenn als erstes die Kalibrierung für das Freimessen von Wandfüllkies im Rahmen des Rückbaus des Reaktors Saphir des PSI ansteht.

## **Internationale Zusammenarbeit**

Die im Abschnitt 01/4 beschriebene Zusammenarbeit im Rahmen des Projekts EVIDOS (Contract No FIKR-CT-2001-00175 EU-Forschungsprogramm EURATOM/NUCLEAR FISSION [BBW Nr. 01.0024]) verläuft ausgezeichnet.

## **Bewertung 2003 und Ausblick 2004**

Die im Abschnitt „Geplante Teilprojekte“ beschriebenen gesetzten Ziele konnten aus Sicht des PSI für die abgeschlossenen Teilprojekte vollumfänglich erreicht werden.

Die Teilprojekte **01/3**, **01/4**, **02/1**, **02/2** und **03/1** werden 2004 in Rahmen des Projekts weitergeführt werden.

## **Referenzen**

- [1] T. Bolognese-Milsztajn, D. Bartlett, M. Boschung, M. Coeck, G. Curzio, F. d'Errico, A. Fiechtner, V. Giusti, V. Gressier, V. Lacoste, L. Lindborg, M. Luszik-Bhadra, C. Molinos, G. Pelcot, M. Reginatto, H. Schuhmacher, R. Tanner, F. Vanhavere and D. Derdau: **Individual Monitoring in Workplaces with Mixed Neutron/Photon Radiation**, Ninth Symposium on Neutron Dosimetry, 28.9.-3.10.2003, Delft/NL
- [2] A. Fiechtner, M. Boschung and C. Wernli: **Present Status of the Personal Neutron Dosemeter Based on Direct Ion Storage**, Ninth Symposium on Neutron Dosimetry, 28.9.-3.10.2003, Delft/NL

- [3] Ch. Schuler, G. Butterweck: ***Evaluation eines  $\alpha/\beta/\gamma$ -Oberflächenkontaminationsmonitors für die Hauptabteilung für die Sicherheit von Kernanlagen (HSK)***, TM -96-03-02, 2003
- [4] Ch. Schuler, Th. Schange, G. Butterweck: ***Kalibrierung der Freimessanlage RTM644Inc für das Freimessen von Leerfässern***, TM-96-03-12, 2003



Datum: 11. März 2004

Von: F. Cartier

## **Begutachtung zum Jahresbericht 2003 Zusammenarbeit in der Radioanalytik**

### **Einleitung**

Trotz hohem Stand der Messtechnik im Strahlenschutz ergeben sich immer neue Anforderungen aus der Praxis, denen mit Neuentwicklungen von Messmethoden und mit neuen Lösungsansätzen begegnet werden muss. Beispiele sind Freigabemessungen von Materialien beim Rückbau, Messungen von Umweltproben im Rahmen der Immissionsüberwachung und von Proben zur Überwachung der Inkorporationen. Im PSI befasst sich die Sektion Messwesen der Abteilung für Strahlenschutz, Entsorgung und Sicherheit mit Fragestellungen dieser Art. Die vorliegende Vereinbarung ermöglicht der HSK Entwicklungsarbeiten für Analyse- und Messmethoden durchführen zu lassen.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2002 erreicht?**

Der Projektbegleiter beurteilt den Arbeitsfortschritt als sehr gut. Für die Gamma Spektrometrie sind neue Auswertprogramme zur Bestimmung der Aktivität in speziellen Proben, wie z.B. beim Rückbau anfallende, aktivierte Materialien mit hoher Dichte, in Evaluation. Um die Verhältnisse von Plutoniumisotopen in Umweltproben zu bestimmen, wurden bei Pilotmessungen sowohl die Massenspektrometrie, als auch die Alphaspektrometrie angewandt. Die Messergebnisse stimmen einerseits gut überein, zeigen aber auch, dass sich die beiden Messmethoden ergänzen. Dadurch lassen sich allfällige Immissionsquellen näher identifizieren. Für die Probenpräparation von Alphastrahlern wurden Schnellmethoden entwickelt und mit den Routineverfahren verglichen. Die hohe Qualität der Messmethoden ist anhand der Ergebnisse an nationalen und internationalen Vergleichsmessungen belegt.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Ein wesentlicher Gewinn der Vereinbarung ist die Umsetzung des Stands der Technik der chemischen Trenn- und Analyseverfahren in die Radioanalytik und die nationale Zusammenarbeit in diesem Spezialgebiet. Für die Aufsichtstätigkeit der HSK sind die Immissionsmessungen in der Umgebung von PSI, ZWILAG und KKB, sowie die Bestimmung der Transurane in Proben aus dem Reaktorkreislauf eines Kernkraftwerks sehr wichtig.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die regelmässigen Fortschrittsitzungen in der Mitte- und die Berichterstattung auf Ende Quartal wird im gegenseitigen Einverständnis weitergeführt.

# Projekt Zusammenarbeit in der Radioanalytik

Autor und Koautoren	J. Eikenberg, S. Bajo
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit
Adresse	CH-5232 Villigen
Telefon, E-mail, Internetadresse	056-310 23 40, jost.eikenberg@psi.ch
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	Kredit 0.805-3100.044/8
Dauer des Projekts (von – bis)	01.01.2002-31.12.2004

## ZUSAMMENFASSUNG

Im Berichtsjahr wurden im Rahmen des Projektes Zusammenarbeit HSK-Radioanalytik folgende Studien und Entwicklungsarbeiten durchgeführt und mehrheitlich abgeschlossen:

- Kalibrierung eines Ge-Detektors für weiche Photonenstrahlung und Implementierung einer Software zur Berechnung von Probengeometrien, Absorptionsverlusten und Koinzidenzeffekten,
- Anwendung massenspektrometrischer Messungen zur Bestimmung von  $\alpha$ -Strahlern bei der Immissionsüberwachung,
- Entwicklung einer Schnellmethode für die Probenpräparation von  $\alpha$ -Strahlern über Mitfällung mit Lanthaniden,
- Einführung von Schnellmethoden zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlern in Grund- und Trinkwasserproben.

Neben den oben aufgelisteten Projekten nahm die Radioanalytik zudem an mehreren nationalen und internationalen Vergleichsmessungen teil. Bezüglich der  $\gamma$ -Strahler gab es 2 Ringvergleiche von Bodenproben (Veranstalter: IRA Lausanne und Forschungszentrum Wien-Seibersdorf) sowie von synthetischem Wasser und Reaktorwasser (BSF-Berlin). Bei den reinen  $\beta$ -Strahlern gab es wie bereits 2002  $^{14}\text{C}$ -Quervergleiche zwischen der Universität Bern (Physikalisches Institut) und dem PSI (Probenmaterial: Baumringe und Baumblätter). Darüber hinaus wurde an einem internationalen Vergleich für die Bestimmung von Tritium in Wasser teilgenommen (Bundesamt für Gewässerkunde, Koblenz). Bei den Alpha-Strahlern beteiligte sich das analytische Labor an folgenden Ringversuchen: Uranisotope in Grund- und Mineralwasser (IAEA-Wien), U, Pu und Am in Stuhlaschen (PROCORAD-CEA-Paris) und Transurane in kontaminierten Sedimentproben aus der Irischen See (IAEA-Wien). Die PSI-Resultate lagen bei allen Vergleichsmessungen innerhalb der Toleranzbereiche für Ausreissertests.

## Projektziele

Gemäss dem jährlichen Jahresprogramm wurden für 2003 folgende Projektziele mit der HSK vereinbart:

**Thema 02/3 (Kalibrierung eines Ge-Detektors für weiche Photonenstrahlung und Implementierung einer Software zur Berechnung von Probengeometrien, Absorptionsverlusten und Koinzidenzeffekten):**

**Thema 03/1 (Evaluationen der Anwendung massenspektrometrischer Messungen zur Bestimmung von  $\alpha$ -Strahlern bei der Immissionsüberwachung):**

**Thema 03/2 (Entwicklung einer Schnellmethode für die Probenpräparation von  $\alpha$ -Strahlern über Mitfällung mit Lanthaniden):**

**Thema 03/3 (Evaluation von Schnellmethoden zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlern in Grund- und Trinkwasserproben):**

**Thema 02/4 (ad hoc Probleme der HSK nach Absprache mit dem Projektleiter):**

**Thema 02/5 (Teilnahme an Vergleichsmessungen):**

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

**Thema 02/3 (Kalibrierung eines Ge-Detektors für weiche Photonenstrahlung und Implementierung einer Software zur Berechnung von Probengeometrien, Absorptionsverlusten und Koinzidenzeffekten):**

Die  $\gamma$ -Spektrometrie stellt nach wie vor die am häufigsten verwendete Messtechnik in der Radioanalytik dar. Obwohl die  $\gamma$ -Spektrometer der Abteilung Strahlenschutz, Entsorgung und Sicherheit präzise kalibriert sind regelmässig an Ringversuchen teilgenommen wird (Details für 2003 in den Abschnitten über nationale und internationale Zusammenarbeit), müssen noch einige Punkte vertieft werden. Von besonderer Wichtigkeit ist die Berechnung der Aktivität von Proben mit nicht definierter Geometrie (z.B. thorierte Panzermunition), von Proben mit signifikant unterschiedlicher Dichte (z.B. Barytbeton im Zusammenhang mit Fragestellungen beim Reaktorrückbau), sowie von  $\gamma$ -Strahlern mit komplexen Zerfallsschemen (Summationsverluste bei Messungen direkt auf dem Detektor). Derzeit evaluiert werden Software-Versionen von drei Anbietern *ISOCS/LABSOCS* (Firma Canberra-Eurisis), *WINNER-TRACK* (Firma EG & G Ortec) sowie *GESPECOR* (Prof. Sima/PTB Braunschweig). Das PSI (Sektion Betriebstrahlenschutz) ist bereits in Besitz eines charakterisierten Ge-Detektors mit *ISOCS/LABSOCS*-Auswertesoftware. Kürzlich wurde auch bei der Firma EG&G ein portabler  $\gamma$ -Detektor mit Hilfe von Monte-Carlo-Berechnungen spezifiziert und charakterisiert. Dieser Detektor wird zu Beginn 2004 dem PSI zur Verfügung gestellt, um Testmessungen für verschiedene Probengeometrien und Abstände zum Detektor durchzuführen (interne Konsistenzprüfung des *WINNER-TRACK*-Programms). Ebenfalls sollen Proben unterschiedlicher Dichte untersucht werden und nach erfolgter Auswertung via *WINNER-TRACK* und *GESPECOR* auch mit Resultaten weiterer Messungen auf dem spezifizierten Canberra-Eurisis-Detektor verglichen werden. Die Implementierung einer der drei Softwarepakete in der Radioanalytik soll im 1. Halbjahr 2004 abgeschlossen sein.

**Thema 03/1 (Evaluationen der Anwendung massenspektrometrischer Messungen zur Bestimmung von  $\alpha$ -Strahlern bei der Immissionsüberwachung):**

Zum ersten Mal seit Beginn der Radionuklid-Immissionsmessungen wurden am PSI Pilotmessungen von Pu-Isotopen in Umweltproben (Böden) mit Hilfe der Multikollektor-Massenspektrometrie (MS) sowie der  $\alpha$ -Spektrometrie vergleichend durchgeführt. Beide Methoden lieferten sehr zufriedenstellende Ergebnisse insbesondere die MS für das  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ -Verhältnis, das wegen der nahezu identischen  $\alpha$ -Emissionsenergie beider Isotope  $\alpha$ -spektrometrisch nicht bestimmbar ist. Gemessen wurde ein  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ -Massenverhältnis von 5.5, was einem Aktivitätsverhältnis von 1.5 entspricht. Dieses Verhältnis stimmt gut mit Literaturdaten aus Gebieten überein, die nicht durch

Aktiniden-Fallout infolge des Chernobyl-Ereignisses kontaminiert wurden. (Zum Vergleich:  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ (Chernobyl) = 0.6). Eine genaue Kenntnis der Pu-Isotopenverhältnisse bei der Immissionsmessung erlaubt es, bereits geringste Spuren einer Aktinidendeposition infolge Freisetzung aus einer nuklearen Anlage nachzuweisen. Auf der anderen Seite konnte das relativ kurzlebige Isotop  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 88$  Jahre, Freisetzung dieses Isotops vorwiegend infolge des SNAP-9A-Satellitenabsturzes im Jahr 1964) nur via  $\alpha$ -Spektrometrie nachgewiesen werden. Es zeigte sich somit, dass für eine komplette Pu-Isotopenbestimmung beide Messverfahren angewendet werden müssen. Weitere Vergleichsmessungen an verschiedenen Referenzmaterialien laufen derzeit und eine Publikation ist in Arbeit (als Ergänzung einer kürzlich publizierten Arbeit über Pu-Schnellverfahren mittels  $\alpha/\beta$ -Flüssigkeitszintillationsspektrometrie [1]). Im Zusammenhang mit den Pu-Isotopenmessungen wurde auch die verschiedenen Valenzstufen von Pu (+3, +4, +6) untersucht und eine Methode entwickelt, bei der man im Analysegang stabiles Pu(IV) erhält [2] (Traceisotope und zu analysierende Nuklide in der Probe müssen in der gleichen Wertigkeitsstufe vorliegen).

### **Thema 03/2 (Entwicklung einer Schnellmethode für die Probenpräparation von $\alpha$ -Strahlern über Mitfällung mit Lanthaniden):**

Zur Herstellung nahezu masseloser Präparate für die  $\alpha$ -Spektrometrie werden in der Routine Depositionen mittels Elektrolyse vorgenommen. Auf diese Art werden hochauflösende Probenpräparate hergestellt, d.h. die  $\alpha$ -Peaks verschiedener Isotopen eines Elementes (z.B.  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und zugesetzter  $^{232}\text{U}$ -Tracer) bleiben physikalisch getrennt. Versuche mit Lanthan-Fluorid zeigten, dass alternative Präparatherstellungen über Mitfällung etwas rascher sind, dafür aber die Peak-Auflösung etwas schlechter wird. Aus diesem Grund bleibt man in der Routine bei den Elektrodepositionen, in Störfällen mit grossen Probendurchsetzen sind die Fluorid-Fällungen für eine Zeiterparnis aber durchaus sinnvoll.

### **Thema 03/3 (Evaluation von Schnellmethoden zum Nachweis von $\alpha$ -Strahlern in Grund- und Trinkwasserproben):**

Bei den natürlich vorkommenden  $\alpha$ -Strahlern in Süswasseraquiferen handelt es sich vor allem um Isotope von U, Ra und Po. Klassische Separationsmethoden zwischen den drei Elementen sind relativ komplex und zeitaufwendig. Daher wurden in der PSI-Radioanalytik in Zusammenarbeit mit der Firma EiChrom (Darien, IL, USA) verschiedene Extraktionsharze auf ihre Sorptionseigenschaften für Uran, Radium und Polonium in Batch-Versuchen ausgetestet. Für  $\text{Ca}^{2+}$ -Konzentrationen bis zu 300mg/l (entspricht einem stark mineralisiertem Trinkwasser) wurden nahezu quantitative Ausbeuten für U und Po mit dem kommerziell erhältlichen Produkt *Actinide Resin*<sup>TM</sup> erreicht (Abbildung 1), während die Ausbeuten für  $\text{Ra}^{2+}$  mit zunehmender  $\text{Ca}^{2+}$ -Konzentration deutlich abnahmen (Grund: Konkurrenz zwischen  $\text{Ra}^{2+}$  und  $\text{Ca}^{2+}$ ). Für die selektive Sorption von Ra wurden daraufhin verschiedene Kronenether z.T. mit zufriedenstellendem Erfolg ausgetestet, allerdings waren mitunter signifikante Quenchkorrekturen für die Flüssigszintillationsmessung notwendig. Seitens der Firma EiChrom wird nun angestrebt, durch leichte Modifikationen an den Extraktionsharzen die Quencheffekte zu minimalisieren und danach ein neues Produkt (Mischharz) auf den Markt zu bringen.

Die Analysemethode via Adsorption an *Actinide Resin*<sup>TM</sup> ist sehr einfach und geht wie folgt: Zugabe von 1 g des Harzes unter Rühren zu einer Wasserprobe von 0.1 Litern. Nach einer Expositionszeit von 1-2 Stunden wird die Probe abfiltriert (Abbildung 2, rasche Sorptionskinetik). Das abfiltrierte *Actinide Resin*<sup>TM</sup> wird dann in ein LS-Vial gespült und mit einer Szintillationsflüssigkeit (z.B. *Ultima Gold AB*<sup>TM</sup>) vermischt. Der Cocktail wird dann direkt im LS-Spektrometer ( $\alpha/\beta$ -Zählmodus) ausgemessen. Die Methode erlaubt zwar keine spektrale Trennung zwischen den natürlich vorkommenden  $\alpha$ -Emittern, ist aber als Screening-Technik hervorragend geeignet, Gesamalphabestimmungen in Trinkwasserproben mit einer Nachweisgrenze von ca. 50 mBq/l (bei einer Stunde Messzeit) durchzuführen. Neben dieser Screeningmethode stehen dem radioanalytischen Labor für nuklidspezifische Bestimmungen von U, Th, Ra und Po in Wasserproben separate Arbeitsvorschriften zur Verfügung, mit denen leicht Nachweisgrenzen von einigen mBq/l erreicht werden können.



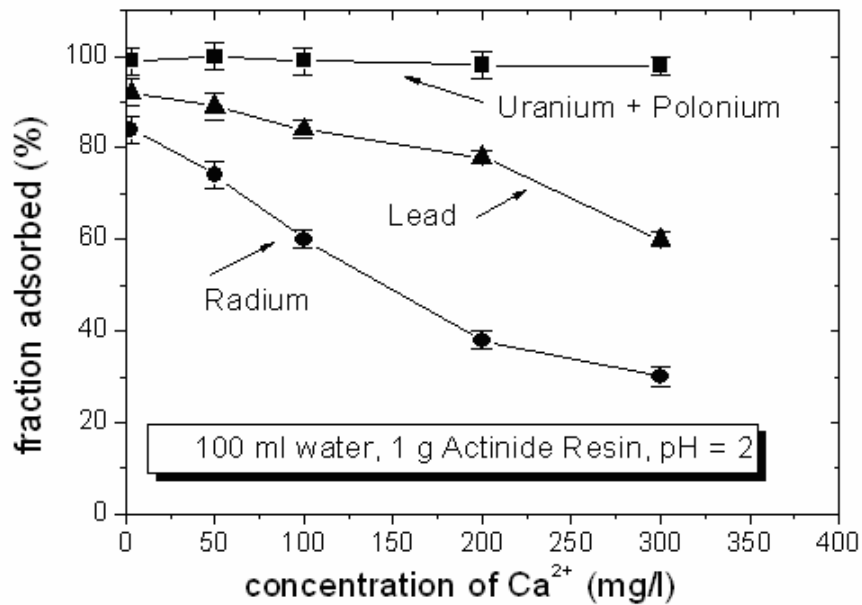


Fig. 1

**Abbildung 1:** Adsorbierte Fraktionen von U, Po, Ra und Pb an dem Extraktionsharz *Actinide Resin*<sup>TM</sup> als Funktion der Ca<sup>2+</sup>-Konzentration (Expositionszeit: 2 Stunden).

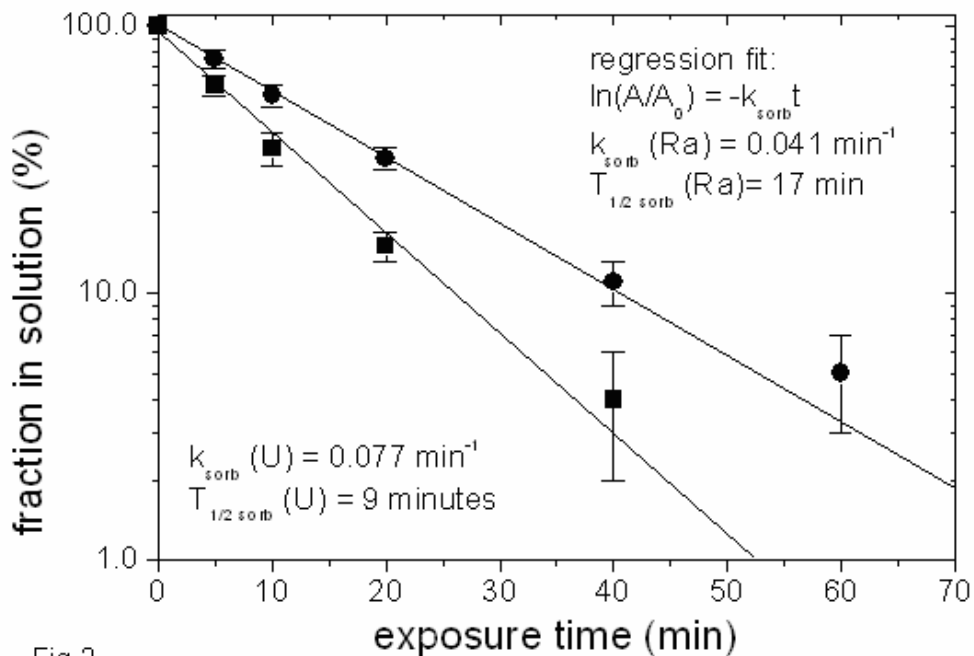


Fig.2

**Abbildung 2:** Sorptionskinetik: verbleibende Anteile von U und Ra in der Lösung in Abhängigkeit der Sorptions-Expositionszeit. Die Figur zeigt, dass nach bereits 1 h Expositionszeit > 95% von U (und Ra) an der Reagenz adsorbiert sind.

### Thema 02/4 (ad hoc Probleme der HSK nach Absprache mit dem Projektleiter):

Im Berichtsjahr wurden für die HSK einige Wasserproben aus Nuklearanlagen auf die Aktivitätskonzentrationen von Tritium gemessen.

## Nationale Zusammenarbeit

**NAGRA-Migrationsprojekte:** Das radioanalytische Labor beteiligte sich im Jahr 2003 an zwei Projekten im Rahmen von Radwaste-Endlagerstudien zur Erkundung des Transportverhaltens von Radiotraceren in geologischen Formationen. Bei den Versuchen im Felslabor Grimsel (für die jeweils HSK-Bewilligungen erforderlich waren) wurden in Dipolexperimenten die Durchbruchkurven von chemisch reaktiven und kurzlebigen Tracern ( $^{24}\text{Na}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ) neben denjenigen von sich chemisch inert verhaltenden, konservativen Anionen ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{82}\text{Br}$ ) aufgenommen. Dazu wurde ein neues Modell eines cryo-gekühlten, hochauflösenden Reinstgermanium-Spektrometers (Typ X-Cooler, Firma EG&G Ortec) für die in-situ-Spektrometrie verwendet. In einem weiteren Projekt zur Ermittlung von Diffusionsgeschwindigkeiten in Tongesteinen wurden Wasser und Gesteinsproben im Analytiklabor auf HTO,  $^{22}\text{Na}$ , stabiles I und Cs untersucht. Die Datensätze der Feldversuche sowie diejenigen von weiteren begleitenden und international durchgeführten Laborexperimenten werden dann für detaillierte numerische Transportberechnungen verwendet (Zusammenarbeit zwischen NAGRA, PSI, ENRESA-Spanien und ANDRA-Frankreich).

**ZWILAG AG und KKW Beznau:** Das PSI-Routineprogramm zur Radionuklid-Immissionsüberwachung schliesst die nähere Umgebung des PSI und des benachbarten Kernkraftwerkes Beznau ein. Zu fixen Zeitpunkten und an festgelegten Ortkoordinaten werden fortlaufend Umweltproben erhoben, wobei der Luftpfad (über Vaseline-Staubfangplatten und Luftfilter) sowie der Wasserpfad (via Regen- und Flusswassersammler) erfasst werden. Hinzu kommen noch Bodenproben und Grasproben. Diese Umwelt-Untersuchungen sind von hoher Wichtigkeit für die Erkennung bereits geringfügiger Mengen von emittierten Radionukliden aus einer nuklearen Anlage. Allerdings umfassten die bis vor wenigen Jahren durchgeführten Immissionsmessungen lediglich Gammastrahler (wie  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , U-Th-Zerfallsreihen) und Tritium ( $^3\text{H}$ ). In Umweltproben sind jedoch auch weitere, anthropogen freigesetzte Radionuklide von Relevanz, insbesondere die reinen  $\beta$ -Strahler  $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$  und langlebige, vorwiegend über  $\alpha$ -Strahlung zerfallende Aktinidenisotope wie  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  (Herkunft dieser anthropogenen Aktiniden durch oberirdische Atomwaffentests vor ca. 50 Jahren). Um die Immissionsmessungen auf diese Isotope auszudehnen, wurden in den letzten Jahren radioanalytische Trennmethoden entwickelt, durch Vergleichsmessungen validiert und in den Routinebetrieb implementiert (kompletter Datensatz in den Quartalsberichten Immissionsmessungen seit 2002).

**KKW Leibstadt:** Im Jahr 2003 führte das PSI mehrere nuklidspezifische Messungen an Kratzproben und Reaktorwasser zur Bestimmung von Aktiniden ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) durch. Alle Analysenergebnisse wurden termingerecht übermittelt.

### Physikalisches Institut der Universität Bern:

Innerhalb der letzten Jahre wurde im radioanalytischen Labor eine hochempfindliche Methode zum Nachweis von  $^{14}\text{C}$  in Umweltproben (z.B. Baumblätter) über Benzolsynthese entwickelt. Die Methode zeigte sich als empfindlich genug, um  $^{14}\text{C}$ -Überschüsse von nur 1-2 % aus Kraftwerksemissionen gegenüber natürlichem  $^{14}\text{C}$  aus kosmischer Produktion und der Komponente aus Kernwaffen-Fallout signifikant nachzuweisen. In der Umgebung PSI werden seit 2002 routinemässig an definierten Standorten 12 Baumblätterproben erhoben und auf  $^{14}\text{C}$  analysiert. Zur Qualitätssicherung wurden im letzten Jahr an Baumblättern und Standardmaterialien (wie NIST-Oxalsäure, Bern-Standard) sowie im Jahr 2003 an Baumringen (0, 20, 25, 30 Jahre alt) Vergleichsmessungen mit dem physikalischen Institut der Universität Bern durchgeführt. Die Resultate sind in nachstehender Tabelle dargestellt.

**Tabelle 1: Vergleichsmessung PSI – Universität Bern an Baumringen, Baumblättern und weiteren Standardmaterialien: Analysen im Jahr 2002 / 2003**

Probe	$\delta^{13}\text{C}$ [‰]	$^{14}\text{C}$ -Aktivität PSI [mBq/g C]	$^{14}\text{C}$ -Aktivität UNI Bern [mBq/g C]	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰] relativ NIST PSI	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰] relativ NIST UNI Bern
NIST-Oxalsäure Jahr 1977	- 25.0	305.3 $\pm$ 1.5	303.1 (1)	351 $\pm$ 5	342 (1)
Baumblätter PSI-Saphir- Reaktor 1994	- 30.9	299.1 $\pm$ 1.5	299.7 $\pm$ 1.0	323 $\pm$ 5	326 $\pm$ 3
Baumblätter Standort „SIN-West“ 2002	- 32.8	249.8 $\pm$ 1.3	247.6 $\pm$ 0.8	105 $\pm$ 5	95 $\pm$ 3
Baumblätter Standort „Au“ 2002	- 30.9	247.9 $\pm$ 1.3	245.8 $\pm$ 0.8	97 $\pm$ 5	87 $\pm$ 3
Baumblätter Standort „EIR-Ost“ 2002	- 29.3	249.6 $\pm$ 1.3	244.8 $\pm$ 0.8	104 $\pm$ 5	83 $\pm$ 3
Baumblätter Standort „Werkkraftwerk“ 2002	- 31.1	247.2 $\pm$ 1.3	244.4 $\pm$ 0.8	94 $\pm$ 5	81 $\pm$ 3
Baumblätter Bern-Standard 2002	- 33.3	246.1 $\pm$ 1.3	244.1 $\pm$ 0.8	89 $\pm$ 5	80 $\pm$ 2
Baumring KKM, M-15 Jahr 2001/2002	- 24.6	263.6 $\pm$ 1.3	260.1 $\pm$ 0.5	166 $\pm$ 5	151 $\pm$ 2
Baumring s.o., Jahr 1981	- 24.4	304.7 $\pm$ 1.5	303.4 $\pm$ 1.0	348 $\pm$ 5	343 $\pm$ 3
Baumring s.o., Jahr 1976	- 24.6	330.5 $\pm$ 1.7		462 $\pm$ 7	
Baumring s.o., Jahr 1971	- 24.6	345.8 $\pm$ 2.0	344 $\pm$ 8 (2)	530 $\pm$ 8	520 $\pm$ 30 (2)

(1) empfohlener Wert für den NIST-Oxalsäurestandard

(2) Literaturwerte von Nydahl und Loevset (1983)

### Institut Radiophysique Appliquée (IRA) Lausanne:

(PSI Lab Code Nr. 14) Im Berichtsjahr führte das BAG (Abteilung Sektion Ueberwachung der Radioaktivität) in Zusammenarbeit mit der IRA-Lausanne einen nationalen Ringvergleich zwischen den Speziallabors des Bundes, kantonalen Laboratorien und weiteren Messorganisationen durch. Gemessen wurden künstliche und natürliche Gammastrahler in einer kontaminierten Bodenprobe aus der Umgebung Chernobyl (d.h. sogar das Isotop  $^{134}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2} = 2.06$  Jahre, war nach mehr als 17 Jahren nach dem Reaktorunfall noch nachweisbar). Wie nachstehende Tabelle zeigt, war das PSI mit allen nachgewiesenen Radioisotopen sehr nahe an den Sollwerten (Abweichungen < 5 %). Die gemessenen Werte und das Verhältnis PSI-Wert / empfohlener Referenzwert sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

**Tabelle 2: Ringvergleich IRA-Lausanne: Messwerte der Analytik im Vergleich zu empfohlenen Referenzwerten.**

$^{134}\text{Cs}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{137}\text{Cs}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{40}\text{K}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{226}\text{Ra}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{232}\text{Th}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert
10 $\pm$ 2	1.05	3940 $\pm$ 120	0.98	430 $\pm$ 40	1.01	20 $\pm$ 2	1.00	20 $\pm$ 2	0.98

## Internationale Zusammenarbeit (Ringvergleiche)

### Forschungszentrum Seibersdorf, Wien, Gamma-Ringvergleich 2001

(PSI-Lab Code Nr. 3) Dieser Ringvergleich an Bodenproben wurde bereits zum Jahreswechsel 2001/2002 abgeschlossen, aber erst kürzlich seitens des Veranstalters veröffentlicht. Die Resultate sind in nachstehender Tabelle aufgeführt. In Probentyp A waren künstliche, zugesetzte Radioisotope zu messen, während in Typ B natürliche Radionuklide angegeben werden sollten. Es ist in der Tabelle angezeigt, dass die PSI-Werte bei den meisten Isotopen weniger als 5% von den Sollwerten abweichen. Im Gegensatz dazu sind bei den natürlichen Radionukliden aus der Th-Zerfallsreihe die Resultate aber systematisch ca. 10% zu tief (Werte aber noch im Toleranzbereich). Dies ist auf signifikante Summationsverluste der Mehrfachphotonenlinien zurückzuführen, da die Proben in geringem Abstand zum Detektor positioniert wurden. Gemessen wurden die kurzlebigen Multiliniensotope  $^{228}\text{Ac}$  als Mass für  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  als Mass für  $^{228}\text{Th}$  (jeweils komplexe Zerfallschemata). Der Vergleich zeigt deutlich, dass die für 2004 geplante Implementierung einer Messsoftware zur Korrektur von Koinzidenzen, Proben-Selbstabsorption (Dichte) und – Geometrie für die Qualitätssicherung dringend notwendig ist.

Tabelle 3: Messergebnisse Gammaring 2001 (künstliche Radionuklide)

Probe	$^{54}\text{Mn}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{57}\text{Co}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{60}\text{Co}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{137}\text{Cs}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert
A-1	390 ± 20	1.03	390 ± 20	1.03	1090 ± 40	1.07	1030 ± 30	1.01
A-2	10.2 ± 1.2	1.07	9.2 ± 1.0	0.97	20.4 ± 1.5	1.05	20.1 ± 1.5	0.98
B-2	1170 ± 40	1.03	56 ± 4	1.00	840 ± 30	1.06	1040 ± 30	1.00

Messergebnisse Gammaring 2001 (natürliche Radionuklide)

Probe	$^{40}\text{K}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{228}\text{Th}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert	$^{228}\text{Ra}$ [Bq/kg]	PSI / Sollwert
B-1	410 ± 40	0.95	350 ± 30	0.89	350 ± 30	0.89
B-2	510 ± 50	1.01	90 ± 10	0.87	90 ± 10	0.87

### International Atomic Energy Agency (IAEA) Wien, Uran in Trinkwasser 2003

(PSI-Lab Code Nr. 140) Tabelle 4 zeigt, dass insbesondere bei den Proben mit höheren Aktivitäten (Proben 423 und Standard-Lösung) wegen der guten Messstatistik die Abweichungen zwischen dem Ausrichter und der PSI-Radioanalytik sowohl für  $^{234}\text{U}$  wie auch  $^{238}\text{U}$  sehr gering sind (< 3 %). Nur Probe IAEA-428 muss als Ausrutscher betrachtet werden. Da für alle Proben die Aktivitätsberechnung über Peakflächenvergleich zu einem zugesetzten  $^{232}\text{U}$ -Tracer erfolgte (und das Verhältnis PSI/soll < 1 ist), ist es hier naheliegend, dass bereits vor der Tracerzugabe ca. 40% Uran in dieser Probe ausgefallen sind (einige Mikrogramm, daher visuell nicht erkennbar).

### Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) Berlin, Radionuklide in Reaktorwasser 2002

(PSI-Lab Code Nr. 44) In diesem Ringvergleich werden Radionuklide (insbesondere Spalt- und Aktivierungsprodukte) in realen Reaktorwasserproben sowie synthetischen Wasserproben bestimmt. Es ergab sich eine gute Übereinstimmung sowohl beim Reaktorwasser wie auch beim synthetischen Wasser. Für alle  $\gamma$ -Strahler mit Aktivitäts-Konzentrationen > 1 Bq/Liter ergab sich eine gute Übereinstimmung mit den entsprechenden Mittelwerten aller Teilnehmer innerhalb von 4%.

Tabelle 4: Messergebnisse für den IAEA Ringvergleich Uran in Wasser 2003

Probe	<sup>234</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>234</sup> U: PSI/ Sollwert	<sup>238</sup> U: PSI/ Sollwert
	[Bq/kg] Sollwert	[Bq/kg] Messwert PSI	[Bq/kg] Sollwert	[Bq/kg] Messwert PSI		
IAEA-419	0.040	0.037 ± 0.004	0.031	0.030 ± 0.003	0.93	0.97
IAEA-420	0.045	0.049 ± 0.005	0.036	0.041 ± 0.004	1.09	1.14
IAEA-421	0.050	0.047 ± 0.005	0.041	0.042 ± 0.004	0.94	1.02
IAEA-422	0.090	0.088 ± 0.007	0.083	0.076 ± 0.007	0.98	0.92
IAEA-423	0.239	0.240 ± 0.010	0.238	0.240 ± 0.010	1.00	1.01
IAEA-424	0.001	< 0.003	0.0005	< 0.003		
IAEA-425	0.045	0.039 ± 0.004	0.006	0.005 ± 0.002	0.87	0.83
IAEA-428	0.059	0.034 ± 0.004	0.058	0.034 ± 0.003	0.60	0.59
standard solution	468	479 ± 10	486	481 ± 10	1.02	0.99

#### Bundesamt für Gewässerkunde (BfG) Koblenz, Tritium (<sup>3</sup>H) in Wasser 2002

(PSI-Lab Code Nr. 5) Der grösste Ringvergleich von Tritium in Wasser in Mitteleuropa wird alle drei bis vier Jahre vom BfG-Koblenz (BRD) initiiert. Drei Proben (1 x low level, 2 x intermediate level) werden jeweils hergestellt und verschickt. Alle PSI-Messwerte stimmen innerhalb der Messunsicherheiten mit den Sollwerten sowie auch mit den Mittelwerten der Teilnehmer überein. Im Detail wurden folgende Resultate ermittelt: Probe T1 low level (jeweils in Bq/l): PSI 4.1 ± 1.0., Soll 5.0 ± 0.4, Mittelwert 5.1 ± 2.3; Probe T2 PSI 11.0 ± 1.0., Soll 12.3 ± 0.4; Mittelwert 12.3 ± 2.5; Probe T3: PSI 85.9 ± 5.2., Soll 80.0 ± 1.2, Mittelwert 86.4 ± 4.3

#### PROCORAD-CEA Paris, Radiotoxicological Intercomparison Exercise

(PSI-Lab Code Nr. 12) PROCORAD-CEA (Frankreich) ist die weltweit bekannteste Organisation für Ringvergleiche im Rahmen von *in-vitro*-Inkorporationsmessungen (Ausscheidungsanalytik). Das PSI beteiligt sich jährlich an der Transuran-Analyse in Stuhlasche, um permanent – z.B. nach Zwischenfällen mit Verdacht auf Inkorporation – entsprechende Analyse- und Messtechniken anwenden zu können. Im Ringvergleich 2003 gab es eine gute Übereinstimmung bei den Transuranen (Pu, Am, Abweichung zum Sollwert < 4 %) sowie eine Abweichung von 10-15 % bei der natürlichen Uran-Komponente (relativ grosse zählstatistische Messunsicherheit, alle Resultate im Toleranzbereich).

## Referenzen

- [1] J. Eikenberg, S. Bajo, M. Rüthi, C. Gann, H. Beer und G. Butterweck: **A rapid procedure for determining <sup>239+240</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu in environmental samples using  $\alpha/\beta$ -LSC.** LSC-2001 – *Advances in liquid scintillation spectrometry* (eds. S. Möbius, J. Noakes, F. Schönhofer), *Radiocarbon*,, Seiten 351 – 362, 2003.
- [2] S. Bajo und J. Eikenberg: **Preparation of a stable Pu(IV) tracer solution.** *Radiochim. Acta*, 91, Seiten 495 – 497, 2003.



Datum: 8. März 2004

Von: G. Schwarz

## **Begutachtung 2003 für das Projekt Aeroradiometrie 2**

### **Einleitung**

Der Erhalt der Einsatzbereitschaft der Aeroradiometrie bedingt eine ständige Wartung und eine kontinuierliche Weiterentwicklung der Methodik und der Messsysteme. Aus diesem Grund wurde das bisher bestehende Forschungsprojekt "Methodische Weiterentwicklungen in der Aeroradiometrie" im Jahr 2001 in einen Expertenvertrag mit dem PSI überführt. Neben dem Erhalt der Einsatzbereitschaft soll die Mitarbeit der Schweiz am EU-Projekt „European Calibration and Coordination of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry (ECCOMAGS)“ ermöglicht und somit auch die internationale Vergleichbarkeit der Messergebnisse verbessert werden. Zudem soll die wissenschaftliche Betreuung der operationellen Einsätze durch die Nationale Alarmzentrale sichergestellt werden. Schliesslich soll die HSK beim Aufbau und der Anwendung von Datenbanken unterstützt werden.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Das ECCOMAGS-Projekt wurde im Jahr 2003 abgeschlossen. Die dabei gewonnenen Ergebnisse stehen der Schweiz zur Verfügung und können für die Verbesserung der Gerätekalibration herangezogen werden. Damit wurde ein wesentlicher Beitrag zur Erreichung der Projektziele geleistet.

Die Auswertesoftware konnte weiter verbessert werden und hat in der länderübergreifenden Quellenortungsübung ihre Praxistauglichkeit bewiesen. Weiter wurden Konzept und Spezifikation für die neuen Messsysteme erstellt und mit den Montagearbeiten begonnen. Auch die Berichterstattung über die durchgeführten Messungen erfolgte termingerecht. Damit wurden alle Ziele für das Jahr 2003 erreicht.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung von dieser Forschungstätigkeit ein?**

Die Aeroradiometrie ist ein wichtiges Element der schweizerischen Notfallorganisation und wird seit 1994 operationell unter der Leitung der NAZ eingesetzt. Die im Rahmen dieses Projektes entwickelten Erweiterungen und Verbesserungen am Messsystem und an der Methodik erlauben nicht nur schnellere und bessere Resultate für alle beteiligten Stellen in Notfällen sondern auch eine internationale Vergleichbarkeit der Messdaten.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das Projekt war sehr erfolgreich. Es die Zusammenarbeit mit dem PSI im Bereich der Aeroradiometrie wird im Rahmen eines Folgeprojektes weitergeführt.

# Aeroradiometrie 2

Autor und Koautoren	B. Bucher, Ch. Wernli
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut
Adresse	Paul Scherrer Institut
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 23 38, <a href="mailto:benno.bucher@psi.ch">benno.bucher@psi.ch</a> , <a href="http://www.psi.ch">www.psi.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	H-100061
Dauer des Projekts (von – bis)	3.4.2001 – 31.12.2003

## ZUSAMMENFASSUNG

Im Jahre 2002 konnten verschiedene Teilaspekte des Projektes bearbeitet werden. Neben der Berichterstattung in „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz“, herausgegeben vom Bundesamt für Gesundheit, wurde auch der wissenschaftliche Bericht zu den Messungen im Rahmen der Übung UARM02 publiziert. Darin konnte die gute Kalibration unseres Messsystems bestätigt werden.

In der Messübung des Jahres 2003 konnte bei der Suche nach radioaktiven Quellen, die in einer gemeinsamen Messübung mit dem Spürtrupp des österreichischen Bundesministeriums des Innern erfolgte, die Nützlichkeit einer online Auswertungs- und Darstellungssoftware demonstriert werden.

Für die Operationalisierung der neuen online Auswertungssoftware wurden 2003 die Benutzer weiter geschult und die Benutzeranleitung entsprechend dem Feedback angepasst. Im Herbst konnte mit der Erneuerung der Messsysteme begonnen werden. Das dafür notwendige Material wurde beschafft. Bis zu den Messflügen 2004 werden zwei erneuerte Messsysteme zur Verfügung stehen.

Im Rahmen des Ende 2003 auslaufenden EU-Projektes ECCOMAGS wurde ein Datenformat für den internationalen Austausch von Aeroradiometriedaten definiert und implementiert. Sämtliche während der interantionalen Messübung RESUME2002 in Schottland aufgenommenen Daten sollen in diesem Format archiviert werden.

## Projektziele

Die Aeroradiometrie ist ein Messmittel der Einsatzorganisation Radioaktivität (EOR) des Bundes und untersteht operationell der Nationalen Alarmzentrale (NAZ). Der Erhalt der Einsatzbereitschaft der Aeroradiometrie bedingt eine ständige Wartung und eine kontinuierliche Weiterentwicklung der Methodik und der Messsysteme. Weiter soll die Mitarbeit der Schweiz am EU-Projekt „European Calibration and Coordination of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry (ECCOMAGS)“ ermöglicht und somit auch die internationale Vergleichbarkeit der Messergebnisse verbessert werden. Zudem soll die wissenschaftliche Betreuung der operationellen Einsätze durch die Nationale Alarmzentrale sichergestellt werden. Schliesslich soll die HSK beim Aufbau und der Anwendung von Datenbanken unterstützt werden.

Im Jahr 2003 sollte die Operationalisierung der neuen online Auswertesoftware mit der Schulung der Benutzer abgeschlossen werden. Der wissenschaftliche Bericht zu den Messungen des Jahres 2002 war zu verfassen. Zudem sollten die Rechner und die Elektronik der beiden Messsysteme ersetzt werden. Diese Arbeiten sollten neu am Paul Scherrer Institut (PSI) durchgeführt werden, damit nachher auch die Wartung der Systeme durch das PSI übernommen werden kann.

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Im Frühjahr 2003 und bei den jährlichen Messflügen wurde ein Mitarbeiter des PSI in die Messsysteme eingeführt, damit er die Erneuerung der Messsysteme sowie anschliessend die Wartung übernehmen kann. Im ersten Halbjahr wurde der wissenschaftliche Bericht zu den aeroradiometrischen Messflügen des Jahres 2002 publiziert. Darin wurden auch detaillierte Auswertungen des Messfluges anlässlich der Europäischen Messübung in Schottland dargestellt. Es zeigte sich, dass unsere Kalibration sowie unsere Auswertungs routingen zuverlässig sind und gute Resultate liefern [1]. Im Vergleich mit anderen europäischen Messteams dürfen sich unser System und unsere Resultate sehen lassen. Neben dem wissenschaftlichen Bericht wurde auch ein Beitrag zum Jahresbericht des Bundesamtes für Gesundheit in „Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2002“ [2] geliefert.

Für die Messflüge 2003, die eine gemeinsame Messübung mit dem österreichischen Spürteam des Bundesministeriums des Innern in Kärnten/A beinhalteten, wurde die Auswertungssoftware für das österreichische Koordinatensystem angepasst. Bei den Messflügen in Österreich, bei denen die Suche nach ausgelegten radioaktiven Quellen geübt wurde, konnten jeweils 5 von 6 radioaktiven Quellen noch während des Fluges lokalisiert und identifiziert werden. Nur die schwächste  $^{60}\text{Co}$ -Quelle mit einer Aktivität von 121 MBq konnte nicht geortet werden.

Bei den Messflügen 2003 konnte auch das Navigationstool, das in der online Auswertungssoftware enthalten ist, durch Helikopter-Piloten der Armee auf einem Tablet-PC getestet werden. Nach dem sehr positiven Feedback der Piloten wird im Zuge der Messsystemerneuerung auch dieses Navigationstool eingebaut. Dieses erleichtert die Navigation vor allem in grösseren Waldgebieten oder im Gebirge, wo auffällige Orientierungspunkte im Gelände wie auf der Karte fehlen.

Für die Messsystemerneuerung wurden schon anfangs Jahr die Detailplanungen vorgenommen. Im September erfolgte dann der Auftrag der NAZ. Das nötige Material wurde in der Folge bestellt und mit dem Umbau begonnen. Der Auftrag wird dieses Jahr nicht vollumfänglich abgeschlossen werden können. Spätestens bei den Messflügen 2004 werden aber zwei erneuerte Messsysteme zur Verfügung stehen.



Die Benutzer der neuen Auswertungssoftware wurden während den Messflügen 2003 und auch in den Dienstleistungen des Stabes BR NAZ geschult. Die Benutzeranleitung wurde überarbeitet und Änderungsvorschläge von Seiten der Benutzer berücksichtigt.

Im Rahmen des EU-Projektes ECCOMAGS konnten Datenformate für den Austausch von aeroradiometrischen Daten definiert werden. Diese Datenformate gelten sowohl für Rohdaten als auch für Resultate. Sämtliche Daten der in der Übung RESUME2002 in Schottland aufgenommenen Daten sollen in diesen Datenformaten abgelegt werden.

## **Nationale Zusammenarbeit**

Die jährlichen Messflüge finden jeweils unter der Leitung der NAZ innerhalb einer Dienstleistung von Teilen des Stabes BR NAZ statt. Die Wartung der Messgeräte erfolgte dieses Jahr gemeinsam vom Institut für Geophysik und dem Paul Scherrer Institut. Bei den jährlichen Messflügen sind jeweils auch Experten des Bundesamtes für Gesundheit (Abteilung Strahlenschutz, Sektion Überwachung der Radioaktivität) integriert.

Das jährliche Messprogramm wird durch die Fachgruppe Aeroradiometrie (FAR) festgelegt. Sie gehört zum Bereich A der KOMABC. Die Aeroradiometrie ist ebenfalls in die Einsatzorganisation Radioaktivität (EOR) eingebunden. Als Berater der HSK in Aeroradiometrie und als Vorsitzender der FAR ist Prof. L. Rybach (Küsnacht) tätig.

## **Internationale Zusammenarbeit**

Die HSK ist Partner im EU-Projekt „European Calibration and Coordination of Mobile and Airborne Gamma Spectrometry (ECCOMAGS, FIKR-CT-2000-20098)“. Die entsprechenden Kontakte und Zusammenarbeiten werden von B. Bucher (PSI) wahrgenommen. Dank dieses Projektes bestehen beste Kontakte zu den Aeroradiometrieteams in Deutschland, Österreich, Frankreich, Dänemark, Schottland, Schweden und Norwegen. Dieses Projekt läuft Ende 2003 aus. Voraussichtlich wird kein Folgeprojekt erfolgen, wobei aber von allen Messteams eine weitere Zusammenarbeit gewünscht wird.

## **Bewertung 2003 und Ausblick 2004**

Mit der Berichterstattung über die aeroradiometrischen Messungen des Jahres 2002 konnte ein weiteres Mal ein Beitrag zur Überwachung der Umweltradioaktivität in der Schweiz geleistet werden. Zu den Messflügen des Jahres 2003 wird wiederum ein wissenschaftlicher Bericht erstellt und 2004 publiziert werden.

Die Messübung mit Quellensuche demonstrierte ein weiteres Mal die Nützlichkeit und Tauglichkeit der online Auswertungs- und Darstellungssoftware. Das eingesetzte Navigationstool erleichtert den Piloten die Arbeit und lässt durch die vereinfachte Navigation auch Flugzeit einsparen.

Der erste Schritt zur Übergabe der Wartung vom Institut für Geophysik der ETH Zürich ans PSI erfolgte. Die endgültige Übernahme der Wartung durch das PSI erfolgt nach Ende der Systemerneuerung im Jahre 2004. In der Folge ist die Wartung noch vertraglich zwischen NAZ und PSI zu regeln.

Im Herbst 2003 konnte mit der Erneuerung der Messsysteme begonnen werden. Dabei werden die online Datenauswertung und -darstellung im Messsystem integriert. Die Piloten werden in diesem Zuge auch mit einem Tablet-PC ausgerüstet, auf dem ein Navigationstool installiert ist. Die Erneuerung wird bis zu den Messflügen 2004 abgeschlossen sein. Die Datenübertragung vom

Helikopter an eine Bodenstation soll im Zuge der Systemerneuerung realisiert werden. Bisher waren die Voraussetzungen von der Hardware aus nicht gegeben.

Die Schulung der Benutzer an der neuen Software konnte soweit abgeschlossen werden, dass diese selbständig Routineauswertungen vornehmen können. Die Benutzeranleitungen wurden aufgrund von Benutzerfeedback angepasst. Die Schulung der Benutzer ist periodisch zu wiederholen. Mit der Erneuerung der Messsysteme wird auch eine Schulung an den Messsystemen nötig.

Die Aeroradiometriedaten konnten noch nicht archiviert werden. Die Tools zur Eingabe und Bewirtschaftung der Daten wurden noch nicht erstellt. Die Datenbankstruktur wurde insofern angepasst, dass sie kompatibel zum Datenformat ist, das im Rahmen des EU-Projektes ECCOMAGS entwickelt wurde. Somit lassen sich in der selben Datenbank auch Spektren mit mehr als 256 Kanälen speichern.

## Referenzen

- [1] B. Bucher, L. Rybach, G. Schwarz, Chr. Bärlocher: ***Aeroradiometrische Messungen im Rahmen der Übung ARM02***. PSI Bericht Nr. 03-11, Paul Scherrer Institut, 2003, ISSN 1019-0643.
- [2] B. Bucher, L. Rybach, G. Schwarz, Chr. Bärlocher: ***Aeroradiometrische Aufnahmen in der Schweiz, in: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 2002***. Abteilung Strahlenschutz, Bundesamt für Gesundheit, 2003, ISBN 3-905235-41-2.



Datum: 13.1.2004

Von: H. Isaak

## **Begutachtung 2003 für das Projekt ADPIC-Aktualisierung**

### **Einleitung, allgemeine Bemerkungen**

Das Projekt ADPIC-Aktualisierung soll das im abgeschlossenen Vorgängerprojekt WINDBANK entwickelte Verfahren zur Bestimmung von Windfeldklassen, sowie deren Diagnose und Prognose, für alle drei Kernkraftwerkstandorte in genau derselben Art und Weise implementieren, so dass die Behandlung aller drei Standorte auf den neuesten Stand gebracht, d.h. aktualisiert wird.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Im Berichtsjahr wurden die Clusteranalysen aller 3 Kernkraftwerkstandorte PSI-Beznau-Leibstadt, Mühleberg und Gösgen auf der Basis der im Vorjahr festgelegten Methoden wiederholt. Dabei wurden auch die beiden letzten offenen Fragen bezüglich der minimalen zu berücksichtigenden Windgeschwindigkeit und der optimalen Anzahl der zu bestimmenden Windfeldklassen untersucht und beantwortet. Die neuen Windfeldklassen wurden auf der Basis gerechneter Winddaten des HRM/LM-Prognosemodells sowie gemessener Daten der K-, A- und E-Netze der MeteoSchweiz nach oben zu realistischen dreidimensionalen Windfeldern erweitert, die für Ausbreitungsrechnungen mit Hilfe des Modells ADPIC benutzt werden können. Die Projektziele für 2003 wurden erreicht.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Aufgaben der HSK betreffend der Erstellung von Modellrechnungen sind in der VEOR Art. 18 geregelt. Danach ist die HSK unter anderem für die Prognosen der Entwicklung des Störfalls in der Anlage sowie der möglichen Ausbreitung der Radioaktivität in der Umgebung und der Abschätzung der radiologischen Konsequenzen zuständig. Die HSK berät zudem die NAZ über die Anordnung von Schutzmassnahmen für die Bevölkerung.

Das Modell ADPIC wird für Routineberechnungen im Normalbetrieb und für Störfallberechnungen im Ereignisfall eingesetzt und hat im Rahmen der HSK-Notfallbereitschaft einen hohen Stellenwert. ADPIC ist ein komplexes atmosphärisches Ausbreitungsmodell, welches Topographie und lokale Windverhältnisse berücksichtigt. Für Anwendungen in der näheren Umgebung der schweizerischen Kernanlagen werden die Windfelder aus der WINDBANK verwendet.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Mit den im Jahr 2003 durchgeführten Untersuchungen und Berechnungen sind die Voraussetzungen für eine Implementierung in einen online-Betrieb erfüllt. Im Jahr 2004 sollen die neuen Klassen schrittweise ins bereits aktive online-System eingeführt werden. Weiter soll die bereits theoretisch und programmtechnisch vorhandene Bestimmung der Turbulenzparameter implementiert werden.

# Projekt ADPIC-Aktualisierung

Autor und Koautoren	Fritz Gassmann & Michel Tinguely (PSI), Hanspeter Isaak (HSK)
beauftragte Institution	PSI und HSK
Adresse	CH 5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 26 47, <a href="mailto:gassmann@psi.ch">gassmann@psi.ch</a> , <a href="http://www.psi.ch">http://www.psi.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	DIS-Projekt Nr. 42 261 / Vertrag Nr. 82 190
Dauer des Projekts (von – bis)	2001-2004

## ZUSAMMENFASSUNG

Im Berichtsjahr wurden die Clusteranalysen aller 3 Kernkraftwerkstandorte PSI-Beznau-Leibstadt, Mühleberg und Gösgen auf der Basis der im Vorjahr festgelegten Methoden wiederholt. Dabei wurden auch die beiden letzten offenen Fragen bezüglich der minimalen zu berücksichtigenden Windgeschwindigkeit und der optimalen Anzahl der zu bestimmenden Windfeldklassen untersucht und beantwortet. Es zeigte sich dabei, dass beide Fragen miteinander zusammenhängen und das Optimum wurde für alle drei Standorte bei 19 Klassen und Minimalgeschwindigkeiten von 0.15 m/s gefunden. Dies bedeutet eine deutliche Anhebung der bisherigen Klassenzahl von 12 bzw. 13 auf 19 und eine Reduktion der minimalen Windgeschwindigkeit um einen Faktor 4. Die damit erreichten mittleren Trefferquoten für die Bestimmung der Klassen mit Hilfe der Meteodaten der K-, A- und E-Netze der MeteoSchweiz liegen um ca. 80%. Diese neuen Windfeldklassen wurden auf der Basis gerechneter Winddaten des HRM/LM-Prognosemodells sowie gemessener Daten der K-, A- und E-Netze der MeteoSchweiz für das Jahr 2001 nach oben zu realistischen dreidimensionalen Windfeldern erweitert, die für Ausbreitungsrechnungen mit Hilfe des Modells ADPIC benutzt werden können.

## Projektziel

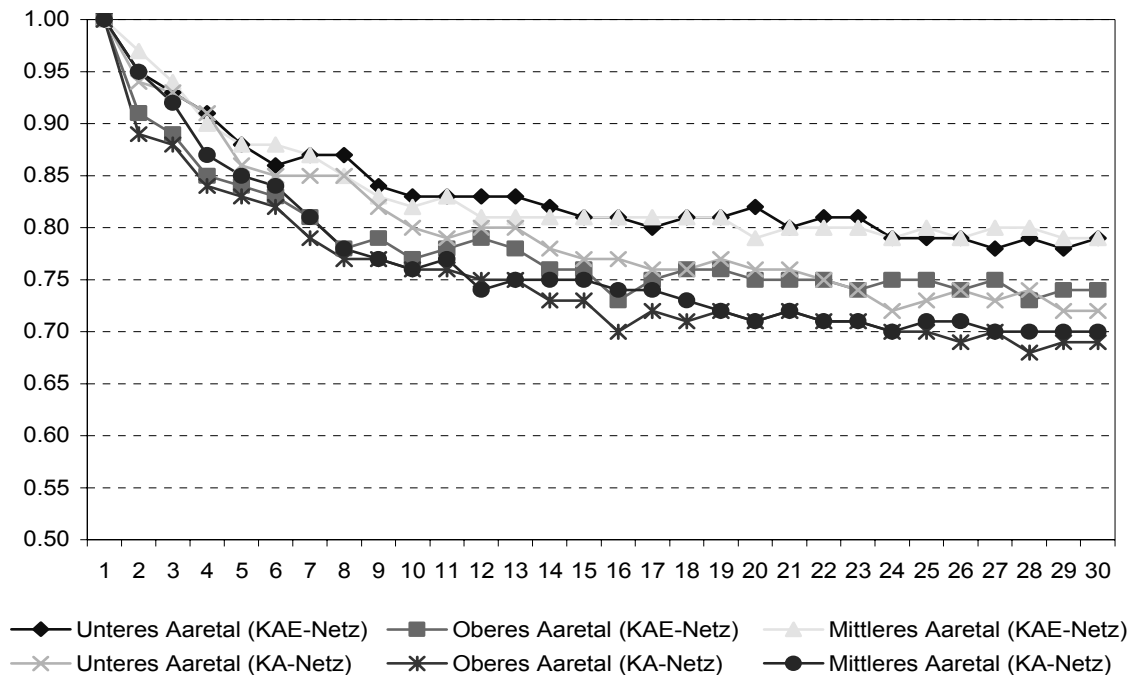
Das Projekt ADPIC-Aktualisierung soll das im abgeschlossenen Vorgängerprojekt Windbank entwickelte Verfahren zur Bestimmung von Windfeldklassen, sowie deren Diagnose und Prognose, für alle drei Kernkraftwerkstandorte in genau derselben Art und Weise implementieren, so dass die Behandlung aller drei Standorte auf den neuesten Stand gebracht, d.h. aktualisiert wird.

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Nach 1995 wurden im Raum Waldshut zusätzliche permanente Meteostationen errichtet, die für die Bildung der Windfeldklassen der Region PSI-Beznau-Leibstadt nicht berücksichtigt werden konnten, weil die temporären PSI-Messstationen kurz nach einer Intensivmessphase wieder abgebaut wurden. In einer Studie [1] konnte gezeigt werden, dass ein Einbezug dieser Stationen in das Verfahren zur Bildung der Windfeldklassen oder zur online-Diagnose und zur Prognose keine wichtigen zusätzlichen Erkenntnisse bringt und deshalb nicht notwendig ist.

Im Vorjahr wurde aufgrund eingehender Untersuchungen beschlossen, alle Windfeldklassen auf den Messdaten zu basieren und die nur teilweise vorhandenen Daten des HRM/LM-Prognosemodells der MeteoSchweiz dafür nicht zu verwenden (vgl. den Jahresbericht 2002). Dieser Entschluss hatte zur Folge, dass alle Windfeldklassen von Grund auf neu berechnet werden mussten. Dank der seit der erstmaligen Bestimmung der Klassen deutlich gestiegenen Rechenleistung der Computer konnten die entsprechenden Rechnungen in einem Bruchteil der Zeit durchgeführt werden, so dass zusätzlich Parameterstudien zur Optimierung der Klassenzahl und der minimalen zu berücksichtigenden Windstärke möglich wurden. Die ursprüngliche Anzahl Klassen waren zweimal 12 und einmal 13 und dabei wurden alle Stunden mit mittleren Windgeschwindigkeiten unterhalb 0.6 m/s unberücksichtigt gelassen. In einer Studie wurden die beiden miteinander zusammenhängenden Parameter variiert und dabei gefunden, dass eine vierfach reduzierte Minimalgeschwindigkeit und eine gleichzeitige Erhöhung der Klassenzahl auf die einheitliche Anzahl 19 zu einer optimalen Trefferquote bei der Diagnose führt (siehe Fig. 1). Die Trefferquoten wurden gleichzeitig mit der Bestimmung der Klassen ermittelt, die auf der Basis von online-Daten der A-, K- und E-Netze (rund 20 permanente Bodenstationen und Meteotürme) sowie einer größeren Anzahl temporärer Meteostationen (20-30 Bodenstationen und 1 SODAR, die für die rund viermonatigen Messperioden aufgestellt wurden) bestimmt wurden. Als Resultat wird jeder Stunde der Messperiode eine Klasse zugeordnet. Im Gegensatz dazu wurden für die Bestimmung der Trefferquoten nur die permanent verfügbaren online-Daten benutzt. Da dieser eingeschränkte Datensatz deutlich weniger Information enthält als der vollständige, kann nicht erwartet werden, dass damit für alle Stunden dieselbe Klassennummer diagnostiziert werden kann, die vorher auf der Basis des gesamten Datensatzes bestimmt wurde. Die Fig. 1 illustriert, wie die Trefferquote abnimmt, wenn die Daten des E-Netzes unberücksichtigt bleiben.

Während die mittlere Trefferquote ab etwa 15 Klassen für alle Standorte stabil bleibt, fällt die minimale Trefferquote besonders für die Standorte PSI-Beznau-Leibstadt und Mühleberg oberhalb 20 Klassen abrupt ab. Die Wahl von 19 Klassen ist deshalb ein Optimum bezüglich Trefferwahrscheinlichkeit und Detailliertheitsgrad der Windfelder. Es versteht sich von selbst, dass mit zunehmender Anzahl Klassen die klasseninternen Varianzen abnehmen, da sich die Windfelder innerhalb jeder Klasse immer mehr gleichen, je mehr Klassen zugelassen werden. Ist die Klassenzahl sehr hoch, zeigen die Klassen nur noch kleine Streuungen (sie sind also sehr genau definiert), sie können aber nur noch mit kleinerer Wahrscheinlichkeit aus den online zur Verfügung stehenden Messdaten diagnostiziert werden. Es besteht deshalb ein „Tradeoff“ zwischen präziser Klassendefinition und Trefferquote. Aus der Fig. 1 ist zu entnehmen, dass die Diagnose für den sehr hügeligen Standort Mühleberg am schwierigsten ist, was plausibel ist.



**Fig. 1:** Mittlere Trefferquote bei der Diagnose mit online-Winddaten der K-, A- und E-Netze (KAE-Netz) bzw. der K- und A-Netze (KA-Netz) der MeteoSchweiz für einen weiten Bereich von Klassenzahlen. Je kleiner die Anzahl der Klassen ist, desto einfacher wird deren Diagnose, was sich in einer grösseren Trefferwahrscheinlichkeit äussert. Der Nachteil kleiner Klassenzahlen ist aber, dass die einzelnen Klassen immer unterschiedlichere Windfelder enthalten (d.h. grössere Varianz). Das Optimum zwischen Klassenzahl und Klassenvarianz wurde bei 19 Klassen gefunden. Unterer Aaretal = PSI-Bezau-Leibstadt, Oberer Aaretal = Mühleberg, Mittlerer Aaretal = Gösgen.

Für die Definition der Klassen konnte aus verschiedenen Gründen auf einen Einbezug von gerechneten Daten verzichtet werden. Für eine physikalisch sinnvolle Extrapolation der bodennahen Windfelder bis in Höhen von etwa 1000 m über Grund sind jedoch gerechnete Daten unumgänglich, da Messdaten nur spärlich vorhanden sind (im Wesentlichen Daten von den Meteotürmen auf Chasseral, Stockeren, Bantiger, St. Chrischona, Lägeren und die SODAR-Daten). Aus diesem Grund wurde ein Verfahren entwickelt, das uns erlaubt, für alle drei Standorte dreidimensionale Windfelder zu jeder Klasse zu erzeugen, die auf den modernsten meteorologischen Modellen beruhen. Zuerst wurden alle 8760 Stunden des Jahres 2001 auf der Basis der verfügbaren online-Stationen den 19 Klassen (für jeden Standort einzeln) zugeordnet. Mit Hilfe der oben erwähnten hoch gelegenen Messstationen wurden hernach diejenigen gerechneten Windfelder des HRM/LM-Prognosemodells der MeteoSchweiz selektiert, die am besten mit diesen Messungen übereinstimmen. Damit bekam jede Klasse eine Anzahl passender dreidimensionaler Windfelder zugeordnet, die gemittelt werden können und eine physikalisch sinnvolle und deshalb realistische Extrapolation der Klassenmittel darstellen, die für Ausbreitungsrechnungen mit Hilfe des Modells ADPIC benutzt werden kann.

## **Bewertung 2003 und Ausblick 2004**

Mit den im Berichtsjahr durchgeführten Untersuchungen und Berechnungen sind die Voraussetzungen für eine Implementierung in einen online-Betrieb erfüllt. Im kommenden Jahr sollen die neuen Klassen schrittweise ins bereits aktive online-System übergeben werden. Weiter soll die Eingabe-Oberfläche praktischer gestaltet und den Wünschen der HSK angepasst werden. Insbesondere soll die bereits theoretisch und programmtechnisch vorhandene Bestimmung der Turbulenzgrößen implementiert werden.

## **Referenzen**

- [1] F. Gassmann: ***Projekt „Windbank unteres Aaretal“ – Vergleich von Windmessungen beim Wasserwirtschaftsamt Waldshut mit den durch die HSK verwendeten Windfeldklassen***, PSI-Bericht Nr. 02-25, Dez. 2002.



Datum: 14.03.2004

Von: B. Faust

## Begutachtung 2003 für das Projekt Phébus FP

### Einleitung

Seit 1997 beteiligt sich die Schweiz (PSI, HSK) neben den Institutionen des Gastgeberlandes Frankreich (IPSN, EdF), der Europäischen Union, den USA (NRC), Japan (NUPEC, JAERI), Korea (KAERI) und Kanada (COG) mit Forschungsbeiträgen am internationalen Programm PHEBUS FP (Fission Products). Die Modellierung (FP-Tests) von schweren Störfällen am Forschungsreaktor PHEBUS des IPSN (Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire) im französischen Cadarache liefert umfassende Daten zum Verhalten von Spaltprodukten im Kern, im Dampferzeuger und im Containment. Die Beteiligung an diesem Projekt verschafft der Schweiz Zugang zu international validierten Daten, die in die Rechencodes zum Störfallverhalten integriert werden können. Sie kann so Massnahmen für Sicherheitskonzepte und -vorkehrungen ableiten.

Die Beiträge der Schweiz durch das *Paul Scherrer Institut*, Bereich Nukleare Energien und Sicherheit, konzentrieren sich auf Hotzellenuntersuchungen und Post-Test-Analysen (z.B. Ermittlung der Massenbilanz von Spaltprodukten und Elementen der Strukturmaterialien) sowie auf Experimente zum Verhalten von Jod im Containment.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

Im Juni 2003 wurden in Cadarache, Frankreich, bei einem internationalen technischen Seminar zum Phébus FP Projekt Versuchsergebnisse zur Modellierung des Schmelzvorgangs inklusive des Aerosol- und Jodverhaltens im Primärkreislauf und im Containment bei einem schweren Unfall vorgestellt. Neben der Bewertung der, für die Notfallplanung wichtigen Quelltermuntersuchungen wurde diskutiert, wie Schädigungsvorgänge am Brennstoff besser modelliert und interpretiert werden können.

### FPT-2

Im Gegensatz zu den ersten beiden Versuchen FPT-0 und FPT-1 (saures Milieu mit organischen Jodverbindungen und unverdampftem Wasser mit organischen Jodverbindungen) handelte es sich bei FPT-2 um anorganische Jodverbindungen und verdampftes Wasser in basischem Milieu. Diese Randbedingungen sind wichtig für die Planung des „Containment Venting“, da die Effizienz der Filter von der chemischen Form des Jods abhängen. Für das Berichtsjahr geplant waren aerosol- und massenspektrometrischen Untersuchungen von Filtern und deren Auslauglösungen. Weiter war der Abschlussbericht vorgesehen. Die ursprünglich vorgesehenen Termine konnten wegen Personal-mangel nicht eingehalten werden.



### Debris Bed Test FPT-4

Im Jahre 2003 konnten alle massenspektrometrischen Untersuchungen abgeschlossen sowie der Endbericht erstellt werden. Zu nennen sind hier insbesondere Resultate von Aerosolanalysen, eine Massenbilanz bei der Freisetzung von Edelgasen (z.B. Kr und Xe) sowie von Spaltprodukten (leichtflüchtig -z.B. I, Br und Cs, mittelflüchtig -z.B. Ba, Te und Mo und schwerflüchtig -z.B. Ru, Pu und U). Themen waren auch die Massenbilanz von Elementen des Brennstoffes und von Strukturmaterialien.

Bei beiden Tests verhielten sich die Edelgase und leichtflüchtigen Stoffen wie erwartet, während bei mittel- und schwerflüchtigen Stoffen aufgrund grosser Unsicherheiten noch Sensitivitätsanalysen durchgeführt werden sollten. Unabhängig vom pH-Wert im Containmentsumpf liegt der gasförmige Jodanteil im Containment unter 0.1 %. Es hat sich gezeigt, dass Silber gasförmiges Jod nur in basischem Milieu zurückhalten kann. Bei Silberjodid besteht die Gefahr, dass sich Jod im Strahlenfeld wieder verflüchtigt. Entstehen kann das leicht flüchtige Methyljodid  $\text{CH}_3\text{J}$ , welches durch  $\text{NaS}_2\text{O}_2$  nur langsam zersetzt wird. Schneller erfolgt seine Zersetzung mit Hilfe des Ionenaustauschverfahrens durch Zugabe von Aliquat – Trioctylmethylammoniumchlorid.

### "Borcarbide-Tests" (FPT-3)

Die Borcarbide-Tests FPT-3 sollen unter anderem mehr Klarheit über das Jodverhalten bringen. Untersucht wird auch die thermische Zersetzung von Jodverbindungen zur Konditionierung des bei z.B. „Containment Venting“ entstehenden Filterwassers oder des Sumpfwassers. Die erforderlichen Vorarbeiten für die im September 2004 geplanten "Borcarbide-Tests" mit vorbestrahltem Brennstoff wurden im Berichtsjahr durchgeführt. Anstelle von Silber-Indium-Cadmium (SIC) wird Borcarbide  $\text{B}_4\text{C}$  als Absorbermaterial verwendet.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Phebus ist auf dem Gebiet der schweren Unfälle im Moment das einzige Versuchsprojekt im Grossmassstab (1:5000). Gemäss einer Studie im Rahmen des „EU 5<sup>th</sup> Thematic Network Project Eurosafe“ von 2003 gibt es bei schweren Unfällen insgesamt 983 Phänomene, von denen 21 weitere Forschungsarbeiten erfordern. Durch die internationale Zusammenarbeit der Forscher sind nicht nur qualitativ hochwertige Ergebnisse zu erwarten, sondern es wird auch das Verständnis untereinander gefördert. In Zukunft möchte man die Codes weiter verbessern.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die Resultate dienen nicht nur dem Programm Phebus, sondern sollen auch bei den zukünftigen experimentell-orientierten Jod-Projekten des CEA und IRSN angewandt werden. Da der Quellterm wesentlich von der Kühlbarkeit des Kernschmelze abhängt, sind die Ergebnisse des OECD-MCCI (Molten Core Concrete Interaction) Projektes wesentlich für die Abschätzung. Ein wirksamer Bevölkerungsschutz verlangt eine ganzheitliche, fachübergreifende Forschung.

# Projekt PHEBUS Fission Product Programm

## - Schweizer In-Kind Beiträge -

Autor und Koautoren	Z.Kopajtic, D.Gavillet
beauftragte Institution	Paul Scherrer Institut, Würenlingen und Villigen
Adresse	CH-5232 Villigen PSI
Telefon, E-mail, Internetadresse	056 310 2111, <a href="mailto:jonathan.birchley@psi.ch">jonathan.birchley@psi.ch</a> , <a href="http://www.psi.ch">www.psi.ch</a>
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	H 84.2-72.PRJV
Dauer des Projekts (von – bis)	11.06.1997 – 30.06.2003

### ZUSAMMENFASSUNG

Mit der Erstellung des Schlussberichtes (TM-43-03-16, Rev.0) wurde das FPT4-PTA Teilprojekt beendet. Der Bericht wurde der Projektleitung PHEBUS F.P. in elektronischer Form und in Form eines Ausdruckes überreicht.

Die Charakterisierung von Aerosolen aus dem Filter 2G1-051 FOPF-718 mittels EPMA, im Rahmen des Teilprojektes FPT2-PTA, ist abgeschlossen und der Abschlussbericht, TM-43-03-10, Rev.0, erstellt und verteilt. Die Resultate dieser Untersuchungen führten zu interessanten Feststellungen. Es konnte eine zum Teil sehr kleine Teilchengrösse der einzelnen Aerosole ( $\leq 1 \mu\text{m}$ ) beobachtet werden. Als Hauptkomponenten wurden die Elemente des Steuerstabs (Ag, In, Cd) sowie leicht flüchtige Spaltprodukte wie Cs identifiziert. Die Elemente des Brennstoffes (U, Np, Pu, Am und Cm) sowie die refraktären Elemente (Re, Pd, Zr, W) und die schwerflüchtigen Spaltprodukte (Lanthanide, Sr, Ru, Sb) konnten mit der hier verwendeten Methode nicht detektiert werden, da die Konzentrationen dieser Elemente unter der Nachweisgrenze lagen.

Die massenspektrometrischen Analysen und der Abschlussbericht für das Teilprojekt FPT2-PTA hätten bis Ende 2003 abgeschlossen werden sollen. Wegen Personalproblemen konnte nur ein Teil der vorgesehenen Untersuchungen (Messungen mit externer Kalibration vom Filter 2G1-01Q FIPF-714) durchgeführt werden. Diese Verspätung wurde der PHEBUS Projektleitung kommuniziert und ein neuer Arbeitsplan unterbreitet.

Die PHEBUS FP Projektleitung hat das PSI beauftragt die restlichen Filterproben des FPT2 Tests, die an der AEA Technology in England hätten analysiert werden sollen, am PSI zu analysieren. AEA Technology scheint zurzeit nicht in der Lage zu sein, hoch radioaktive Proben zu analysieren. In Absprache mit der PHEBUS FP Projektleitung wurde entschieden, die zusätzlichen drei Filter am PSI im Rahmen des bestehenden FPT2-PTA Teilprojektes als Extension Programm zu analysieren. Der Transport der drei Filter von Sellafield nach PSI erfolgte Ende 2003. Es wurde ein neues „Statement of Work“ ausgearbeitet und von der PHEBUS FP Leitung und der PSI Direktion unterschrieben.

## 1 Projektziele

Am Kernreaktor „PHEBUS“ in Cadarache (Frankreich) werden im Rahmen international koordinierter langfristiger Arbeiten Experimente durchgeführt, welche Daten für eine realitätsnahe Modellierung von Störfallabläufen liefern sollen. Dabei wird insbesondere der Verlauf der Freisetzung von Spaltprodukten verfolgt, die bei einem möglichen Schmelzen des Brennstoffs im Kernreaktor, verursacht durch Versagen der Kühlung, auftreten kann. Die wichtigsten Ziele dieser Testreihen waren:

- Die Beschaffung von experimentellen Daten betreffend der Abklärung von chemischen Vorgängen im Containment.
- Identifizierung von physikalischen und chemischen Prozessen, die für das beobachtete Verhalten von Spaltprodukten im Containment verantwortlich sind.
- Aufklärung von Phänomenen, die noch nicht oder nur teilweise verstanden sind.

Das Projekt ist integriert in die Forschung des Bereiches Nukleare Energie und Sicherheit (NES) des Paul Scherrer Instituts (PSI) und wird mittel- und längerfristig Grundlagen zur Beurteilung von Sicherheitsanalysen und des Störfall-Managements von Kernkraftwerken liefern. Am Projekt sind neben den Institutionen des Gastgeberlandes Frankreich (IPSN, EdF) auch die EURATOM (JRC) sowie Vertreter aus USA (NRC), Japan (NUPEC, JAERI), Korea (KAERI), Kanada (COG) und der Schweiz (HSK, PSI) beteiligt.

### ZIELE DER SCHWEIZER IN-KIND BEITRÄGE ZUM PHEBUS FP PROGRAMM FÜR DAS JAHR 2003

Folgende Laboruntersuchungen sowie die Datenauswertung zu den in den Jahren 1999 (FPT4) und 2000 (FPT2) durchgeführten Kernschmelz-Experimenten waren bildeten im vergangenen Jahr die Schwerpunkte der Schweizer in-kind Arbeiten für das PHEBUS FP Programm:

- **FPT4-PTA:** Abschluss der restlichen massenspektrometrischen Untersuchungen und Erstellung des Endberichtes (Ziel: Ende März 2003).
- **FPT2-PTA:** Abschluss von Aerosol-Untersuchungen vom Filter FIPF 2G1-051-718 mittels EPMA mit Bericht (Ziel: Ende Februar 2003) und Abschluss der massenspektrometrischen Untersuchungen aller Auslauglösungen von Filtern FIPF 2G1-01Q-714, 2G1-031-715 und 2G1-051-718 (Ziel: Ende Juni 2003).

Die ursprünglich gesetzten Ziele konnten infolge verschiedener Vorkommnisse nicht termingerecht realisiert werden. Beide Teilprojekte erfuhr zum Teil signifikante Verspätungen. Diese Verspätungen wurden der PHEBUS Projektleitung rechtzeitig kommuniziert und ein neuer Arbeitsplan unterbreitet. Demnach sollten alle Resultate der FPT4-PTA Untersuchungen (inkl. Abschlussbericht) bis Ende Mai 2003 und alle FPT2-PTA Untersuchungen bis Sommer 2004 abgeschlossen sein.

### FPT3 TEST (BORCARBID-TEST)

Der Start des „Borcarbide-Tests“ (FPT3), ursprünglich vorgesehen für das Jahr 2003, musste ebenfalls verschoben werden (Start voraussichtlich Herbst 2004).

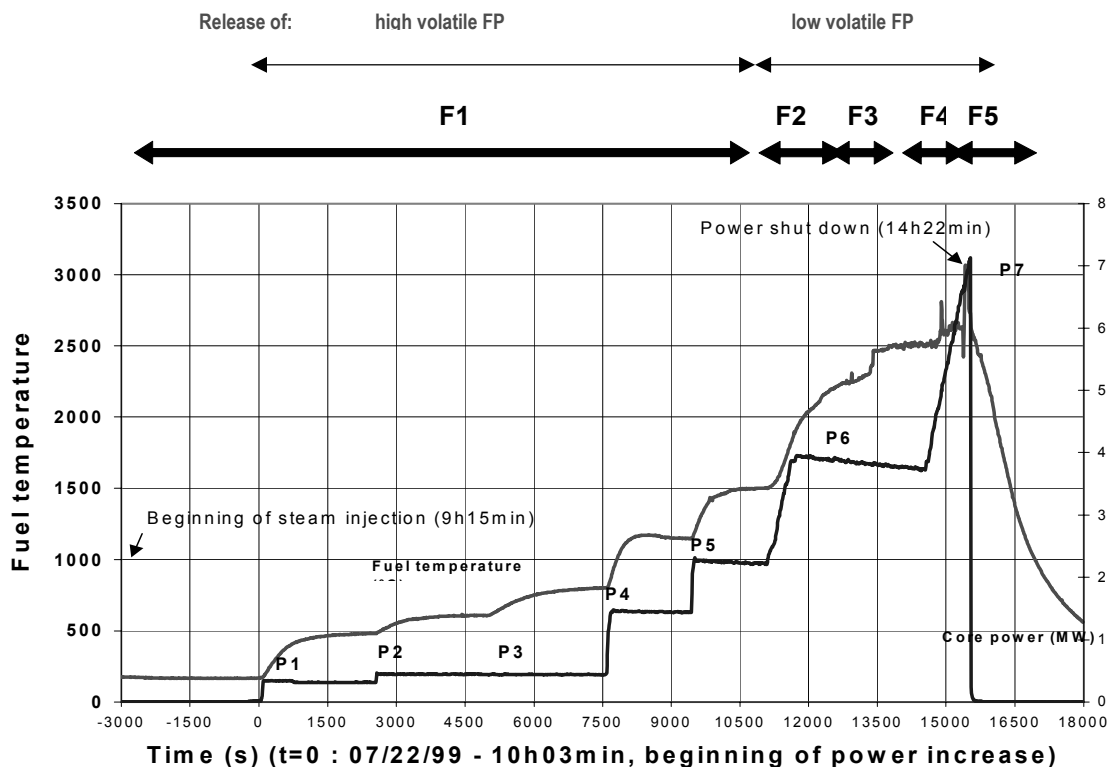
## 2 Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

Auch im vergangenen Jahr war die Schweiz durch das Labor für Werkstoffverhalten (LWV) des NES direkt am PHEBUS FP Programm mit den Teilprojekten **FPT4-PTA** und **FPT2-PTA** beteiligt.

### PHEBUS FPT4-PTA (TASK No. 5)

Der FPT4 Test war der dritte von insgesamt fünf Tests, die im Rahmen des PHEBUS F.P. Projektes ausgeführt wurden (FPT3 Test ist geplant für Herbst 2004) und einzige mit einer „debris bed“ Geometrie. Dabei wurde eine Mischung aus 3.071 kg PWR Brennstoff mit einem mittlerem Abbrand von 38.5 GWd/tU (Anreicherung: 4.5 %), 0.76 kg Zircaloy Cladding-Material und 2.5 kg abgebrannten UO<sub>2</sub> (Anreicherung: 0.23 %), beherbergt in einer Ummantelung aus Thorium, verwendet [1].

Die Hauptziel der FPT4-PTA war die Bestimmung der Massenbilanz für die auf den Filtern abgelagerte Nuklide mit dem Ziel, die Freisetzung der flüchtigen Spaltprodukte und der Actiniden aus dem Brennstoff bei hohen Temperaturen (ca. 2700 °C) in verschiedenen Zeitetappen des Versuches zu untersuchen (vgl. Figur 1).



Figur 1; Operationssequenz für den FPT4-PTA Test

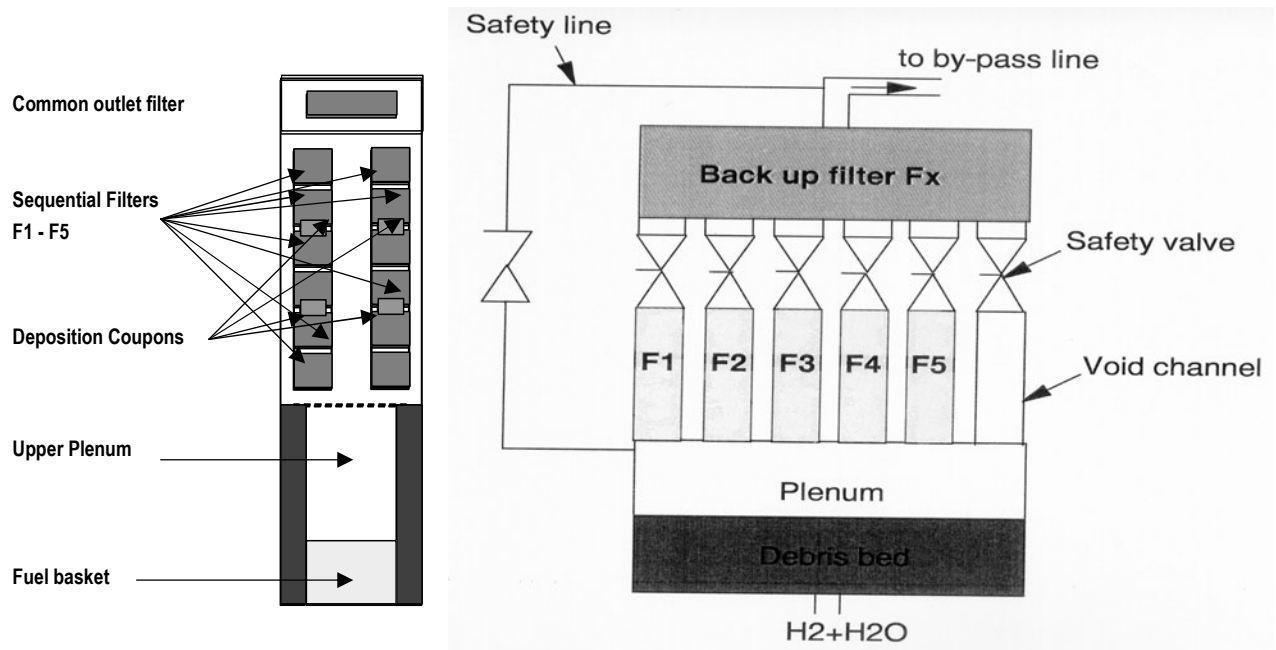
Oberhalb des „debris bed“ wurden 5 sequentiell eingeschaltete Filter (F1 – F5) platziert, welche die während der verschiedenen Phasen des Experimentes freigesetzten Aerosole abfangen sollen. Jeder Filter besteht aus einem Stapel von sechs Filter-Kartuschen und zwei „deposition coupons“ (vgl. Figur 2). Der erste Filter F1 wurde während der Anfangsphase (Kalibrationsphase) sowie während der langsamen Leistungssteigerung bis zu einer Temperatur von 1500 °C (Phasen P1 – P5) eingeschaltet. Der Filter F2 war im Betrieb in der Zeit der Leistungssteigerung zwischen P5 und P6 (Temperatur: ca. 2300 °C) und der F3 Filter blieb eingeschaltet während der Phase P6. Die Filter F4 und F5 wurden eingeschaltet während der abschliessenden Leistungssteigerung von ca. 4 MW bis ca. 7 MW (F4) und nach der Schnellabschaltung (F5).

Mit der Erstellung und der Übergabe der Schlussberichte über die Resultate der EPMA sowie  $\gamma$ - und massenspektrometrischen Analysen [2][3] an die PHEBUS F.P. Projektleitung wurde dieses Teilprojekt erfolgreich abgeschlossen. Die folgenden Ausführungen sollen die wichtigsten Erkenntnisse aus diesem Test klar hervorgehoben werden.

### Resultate Aerosolanalysen

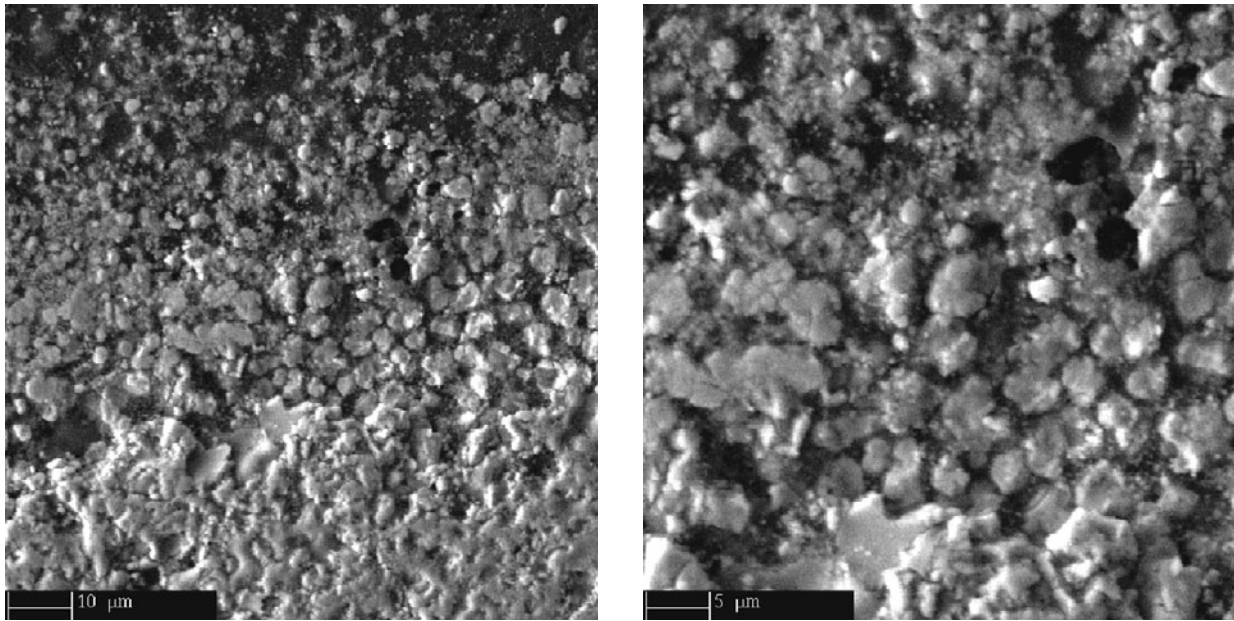
Die Resultate der Aerosol-Analysen mittels der Elektronenstrahl-Mikroanalyse (EPMA) sind in der TM-43-01-15 zusammengefasst. Die wichtigsten Erkenntnisse dieser Untersuchungen waren:

- Während die Verteilung von Aerosolen im Plenum sehr inhomogen ist, so dass eine repräsentative Probenahme nicht garantiert werden konnte, ist die Verteilung von abgelagerten Aerosolen an Coupons (Filterregion) sehr homogen. Die Teilchengrösse der einzelnen Aerosole sowohl vom Plenum als auch von Coupons lag im Bereich zwischen 1 und 10  $\mu\text{m}$ , wobei ein überwiegender Teil der Aerosole in Form von Agglomeraten vorliegt (vgl. Figur 3).

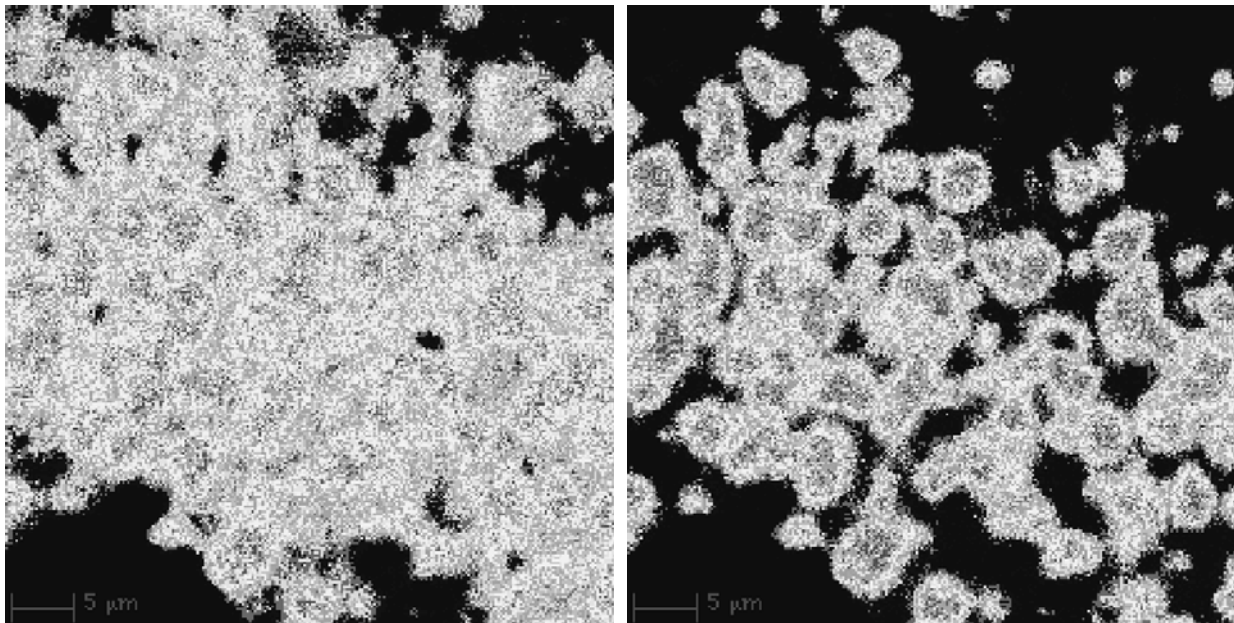


Figur 2; Schematische Darstellung der FPT4 Test-Anordnung

- Die Hauptkomponenten der Aerosole im Plenum bilden die Elemente des Brennstoffes (U, minor Actinides) und der Strukturmaterialien (Re, Sn) sowie die schwerflüchtige Spaltprodukte (Ag, Ba, Te). In vergleichsweise kleineren Mengen wurden Cs, Mo, Pd und I gefunden. Die Hauptmengen der Elemente des Brennstoffes wurden im unteren Teil und nur ca. 1 % im oberen Teil des Plenums gefunden.
- Den Hauptanteil von Spaltprodukten wie Cs und Mo findet man auf den Coupons (d.h. auf den sequentiell angeordneten Filtern). Dabei entfallen ca. 60-80 % der total an Filtern abgesetzten Aerosol-Masse auf Cs und Mo. Die Tatsache, dass Mo vorwiegend in gleichen Teilchen mit Cs und nicht in Ni/Fe/Cr reichen Partikeln gefunden wurde, deutet darauf hin, dass der Ursprung vom Mo nicht vom Material der Couponplatte sein kann, sondern als Spaltprodukt vorliegt. Darüber hinaus findet man in Coupons neben Ba, Pd und U auch Ag und I, jedoch nur in Spuren-Bereich.
- Auffallend ist das Auftreten von Sn/Te und Cs/Mo als Pärchen angereichert in gleichen Teilchen (vgl. Figuren 4 und 5). Es wird angenommen, dass die meisten Elemente in Form von Oxiden transportiert werden (Beispiele: Re als  $\text{Re}_2\text{O}_7$ , Sn als  $\text{SnO}_2$ , U als  $\text{U}_3\text{O}_8$ , Ba als BaO, Cd als  $\text{Cd}(\text{OH})_n$ ). Als Gesamtmenge von freigesetzten Aerosolen wurden ca. 50 g (von anfänglich 3.071 kg Brennstoff) ermittelt. Dies entspricht dem unteren Grenzwert der ursprünglich prognostizierten Massen-Freisetzung (Berechnungen prognostizierten eine Massen-Freisetzung zwischen 10 und 1000 g).



Figur 3; Abbildungen der Plenum Aerosol-Probe (eingebetet in Harz und poliert)



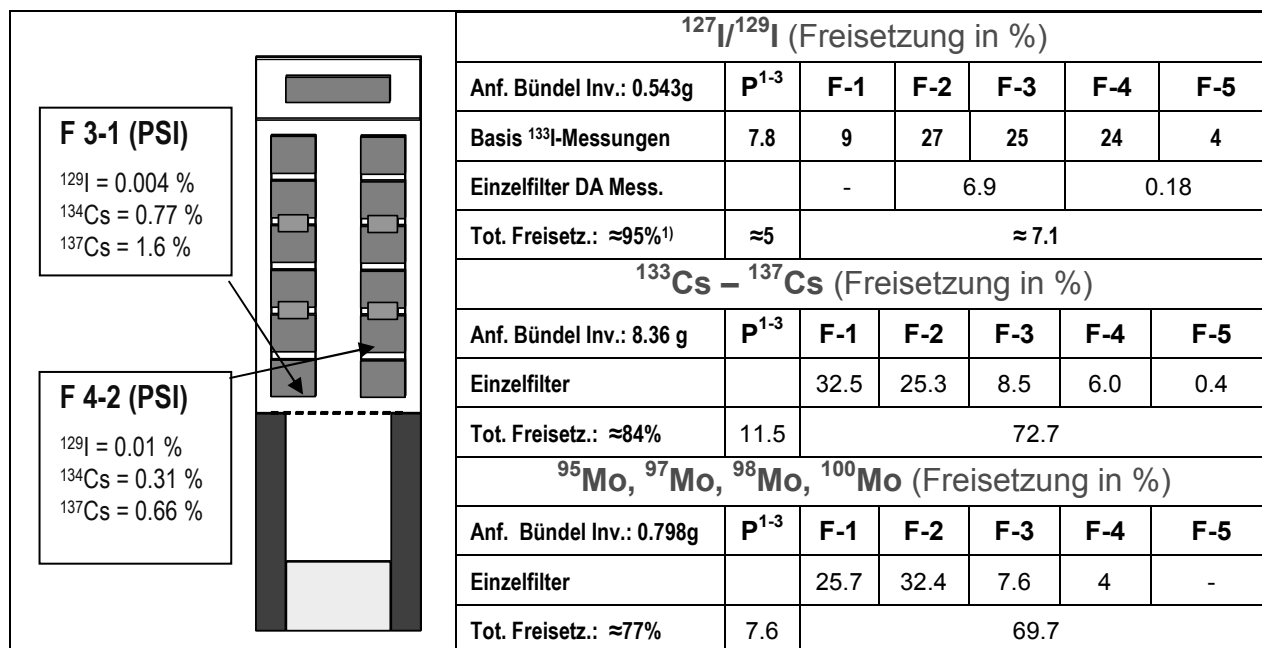
Figur 4; Sn-Mapping, Plenum Aerosol-Probe

Figur 5; Te-Mapping, Plenum Aerosol-Probe

#### **Freisetzung von Edelgasen und leicht flüchtigen Spaltprodukten (Massenbilanz)**

Nach dem „core shut down“ wurden nahezu 100 % der kurzlebigen Xe-Isotopen ( $^{138-140}\text{Xe}$ ) und ca. 90 % der kurzlebigen Kr-Isotope ( $^{90, 91}\text{Kr}$ ) in der Containment-Gasatmosphäre gefunden. Wegen der Messunsicherheit kann die Bedeutung der unterschiedlichen Messresultate von Xe und Kr nicht genauer erklärt werden [1]. Die gemessene totale Freisetzung ist vergleichbar mit den Messungen von bereits durchgeführten PHEBUS FP Tests FPT0, FPT1 und FPT2.

Im Verlauf des FPT4 Tests konnte eine besonders markante Freisetzung von einigen leichtflüchtigen Spaltprodukten wie I, Cs und Mo festgestellt werden (vgl. Figur 6). Die total freigesetzte Menge von I (95 %) und Cs (84 %) ist vergleichbar mit den Resultaten aus den Tests FPT1 und FPT2.



<sup>1)</sup> Die Totale I-Freisetzung wurde berechnet aufgrund  $\gamma$ -spektrometrischer Messungen des kurzlebigen Nuklids  $^{133}\text{I}$

Figur 6; Totale Freisetzung von leicht flüchtigen Spaltprodukten

Die  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen des kurzlebigen Nuklids  $^{133}\text{I}$ , ausgeführt 24 Stunden nach Test-Ende, zeigen, dass ca. 95 % des anfänglich vorhandenen Iods freigesetzt wurden. Diese Messungen zeigen eine homogene I-Verteilung entlang aller sequentiellen Filter (F1 – F5). Die daraus berechneten Mengen für das Element  $\text{I}_{\text{tot}}$  ergaben eine deutlich unterschiedliche Verteilung dieses Elementes in Filtern F1 – F5. Die Tatsache, dass aber nur ca. 12 % des freigesetzten Iods im Plenum und in sequentiellen Filtern gefunden werden konnte wird dadurch erklärt, dass der grösste Teil des I während der Probenvorbereitung für analytische Messungen (Leaching von Filtern) verloren ging. Da in dem Teil des FPT4 Anlage nach den sequentiellen Filtern kein gasförmiges Iod nachgewiesen werden konnte, kann daraus geschlossen werden, dass weniger als ca. 1 % des Iods durch die Filter passiert ist. Der Temperaturgradient innerhalb eines Filters beträgt max. ca. 300 °C. Die höchste Eingangstemperatur von 400 °C wurde beim Filter F3 während der Phase P5 (Brennstofftemperatur ca. 1500 °C) und am Ausgang des gleichen Filters die Temperaturen zwischen 160 und 200 °C gemessen. Es wird nun angenommen, dass die Hauptmengen von I und Cs bei Temperaturen unterhalb 460 °C bereits in kondensiert vorliegen, da die Hauptmengen der leicht flüchtigen Spaltprodukte im Plenum bzw. in den ersten zwei Filtern (F1, F2) deponiert wurden.

Die Kinetik der Freisetzung von Cs scheint ebenfalls vergleichbar mit FPT2, da die grösste Menge des Cs (57.8 %) bis zur Schliessung des Filters F2 freigesetzt wurde, was einer Brennstofftemperatur zu dieser Zeit wie beim Versuch FPT2 von ca. 2300 °C entspricht. Die Freisetzung von Mo im FPT4 (77 %) hingegen ist etwas höher als im Versuch FPT1 (ca. 55 %).

#### Freisetzung von flüchtigen Spaltprodukten (Massenbilanz)

Zu den flüchtigen Spaltprodukten werden allgemein Rb, Pd, Cd, Sb und Te gezählt, obwohl das Verhalten von Pd eher zu den wenig flüchtigen Elementen zugeordnet werden kann. In der Tat, Pd wurde nahezu vollständig im oberen Plenum abgesetzt während ca. 53 % des ursprünglich vorhandenen Rb, 44 % des Te und Cd, 30 % des Sb und ca. 27 % des Pd im Verlauf des FPT4-Tests freigesetzt wurden (vgl. auch Figur 7). Die Freisetzung von Rb und Sb ist vergleichbar mit den beobachteten Werten aus dem FPT1-Versuch (Brennstoffelement in oxidierender Umgebung), während die Freisetzung von Te etwas kleiner ist. Die Freisetzung von Cd kann nicht direkt verglichen werden, da im Testversuch FPT1 ein Ag-In-Cd Kontrollstab eingesetzt wurde, und somit die Hauptmengen des freigesetzten Cd vom Strukturmaterial und nicht als Spaltprodukt vorkommt.

Die flüchtigen Spaltprodukte werden vorwiegend in den sequentiell angeordneten Filtern, insbesondere F1 und F2, deponiert, und weniger im Plenum. So wurden nur ca. 10 % der freigesetzten Mo und Te und ca. 20 – 25 % Rb und Sb im oberen Plenum deponiert. Der Ablagerungsmecha-

nismus für die meisten dieser Elemente läuft voraussichtlich entweder über die Kondensation oder über die chemische Reaktionen an den Filteroberflächen ab.

<b>F 3-1 (PSI)</b> $^{85/88}\text{Rb} = 0.88 \%$ $^{125}\text{Sb} = 1.2 \times 10^{-4} \%$		<b><math>^{85}\text{Rb}, ^{87}\text{Rb}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 1.12 g</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
<b>F 4-2 (PSI)</b> $^{85/88}\text{Rb} = 0.32 \%$ $^{125}\text{Sb} = < \text{DL}$		<b><math>^{121}\text{Sb}, ^{123}\text{Sb}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 36.9 mg</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
DL = Detection Limit		<b>Einzelfilter</b>						
		<b>Tot. Freisetz.: 52.7 %</b>	8.7	44.0				
		<b>Tot. Freisetz.: 30.5 %</b>	8.5	22.0				

Figur 7; Totale Freisetzung von flüchtigen Spaltprodukten Rb und Sb

#### Freisetzung von schwachflüchtigen Spaltprodukten (Massenbilanz)

Die Ablagerung von schwach flüchtigen Spaltprodukten wurde vorwiegend im Plenum erwartet, da die Dampfkondensation dieser Elemente bzw. derer Verbindungen bereits bei Temperaturen oberhalb von ca. 450 – 500 °C zu erwarten war. Die Elemente Sr, Tc und die Lanthanide haben sich zu praktisch 100 % an der Oberfläche des oberen Plenums abgeschieden, während die Konzentrationen an den Filtern verschiedener Elemente unterhalb der Nachweisgrenzen lagen.

<b>F 3-1 (PSI)</b> $^{84,86,88}\text{Sr} = 0.013 \%$ $^{99}\text{Tc} = 0.032 \%$ $^{134,136,138}\text{Ba} = 0.49 \%$ $^{139}\text{La} = 0.0003 \%$ $^{140}\text{Ce} = 0.0006 \%$ $^{151}\text{Eu} = 0.09 \%$		<b><math>^{88}\text{Sr}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 1.08 g</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
<b>F 4-2 (PSI)</b> $^{84,86,88}\text{Sr} = 0.32 \%$ $^{99}\text{Tc} = 0.004 \%$ $^{134,136,138}\text{Ba} = < 0.1 \%$ $^{139}\text{La} = 0.0003 \%$ $^{140}\text{Ce} = 0.001 \%$ $^{151}\text{Eu} = < 0.01 \%$		<b><math>^{99}\text{Tc}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 2.5 g</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
		<b>Einzelfilter</b>						
		<b>Tot. Freisetz.: 1.4 %</b>	0.9	0.6				
		<b>Tot. Freisetz.: 7.1 %</b>	6.4	0.7				
		<b><math>^{134}\text{Ba}, ^{136}\text{Ba}, ^{138}\text{Ba}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 4.47 g</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
		<b>Einzelfilter DA Mess.</b>						
		<b>Tot. Freisetz.: 31.8 %</b>	8.1	23.7				
		<b><math>^{139}\text{La}</math> (Freisetzung in %)</b>						
		<b>Anf. Bündel Inv.: 3.815 g</b> <b>P<sup>1-3</sup></b> <b>F-1</b> <b>F-2</b> <b>F-3</b> <b>F-4</b> <b>F-5</b>						
		<b>Einzelfilter</b>						
		<b>Tot. Freisetz.: 0.36 %</b>	0.36	<DL				

Figur 7; Totale Freisetzung von schwachflüchtigen Spaltprodukten



Im Vergleich mit den Resultaten aus dem FPT1 Test sind die Werte der totalen Freisetzung durchaus vergleichbar, obwohl diejenigen des Sr (1.4 % FPT4 gegenüber 0.3 % FPT1) und der Lanthaniden (0.3 % in FPT4 und < 0.004 % in FPT1) etwas höher liegen. Etwas unklar erscheint die Situation bei den Elementen Ru, Ag und Ba zu sein. Etwa 50 % des freigesetzten Ag findet man an der Plenums-Oberfläche. Ein Vergleich mit dem Versuch FPT1 ist aus gleichem Grund wie bei Cd nicht möglich, da im FPT4, im Gegensatz zu FPT1, das gesamte Ag als Spaltprodukt und nicht als Strukturmaterial vorliegt. Beim Ru präsentiert sich die Lage etwas kontrovers. Die Gesamtmenge des freigesetzten Ru (ca. 1 % des Anfangsinventars) hat sich auf dem ersten Filter F1 abgelagert und nur wenig am Plenum. Die sehr kleine Menge des freigesetzten Ru im FPT4 Test deutet darauf hin, dass unter den gegebenen Bedingungen nur ein kleiner Teil des Ru in Form von leicht flüchtigen RuO<sub>4</sub> vorliegt. Die Hauptmenge des Ru liegt als RuO<sub>2</sub> vor. Die noch ausstehenden PIE Untersuchungen sollten diesbezüglich eine Klärung bringen.

Im Vergleich mit den Testversuchen FPT0 und FPT1 (Ba-Freisetzung < 1 % für beide Tests) konnte im FPT4 Test überraschend eine relativ grosse Freisetzung von Ba (ca. 32 % des Anfangsinventars) beobachtet werden. Diese relativ hohe Freisetzungsrage von 32 % kann eher mit den Werten aus den VERCORS Tests unter Dampfbedingungen (Freisetzung ca. 55 %) verglichen werden [4][5]. Aus dem qualitativen Vergleich der Resultate dieser Untersuchungen mit denen des FPT0 Tests kann möglicherweise eine erste Erklärung abgeleitet werden [6], wonach infolge einer komplexen Wechselwirkung zwischen BaO mit ZrO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub> in Gegenwart von Fe die Bildung von BaZrO<sub>3</sub> und BaUO<sub>3</sub> begünstigt wird, wodurch sich die Flüchtigkeit des Ba drastisch reduziert (Situation in FPT0). Da im FPT4 Test keine zusätzlichen Strukturmaterialien, d.h. auch kein Fe, vorhanden sind, kann die Reaktion mit ZrO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub> nicht bzw. erst später stattfinden. Damit kann die beobachtete hohe Freisetzungsrage am Anfang des FPT4 Versuches, während der Phasen wo die Filter F1 und F2 eingeschaltet waren, möglicherweise erklärt werden.

### Freisetzung von Elementen des Brennstoffes (Massenbilanz)

Die Elemente des Brennstoffes, U, Np, Pu, Am und Cm findet man, wenn überhaupt, in der Kruste oberhalb des geschmolzenen Brennstoffes und vereinzelt in kleinen Mengen im Plenum. Das bedeutet, dass diese Elemente während der Hochtemperatur-Testphase, nach anfänglicher Verdampfung, sehr schnell wieder kondensieren und sich an der Oberfläche, unmittelbar oberhalb der Brennstoffschmelze, wieder ablagern. Der gleiche Freisetzungsmechanismus kann auch für Ru und alle Lanthanide postuliert werden. In der Tat konnte nur eine sehr kleine Freisetzung dieser Elemente während der Testdauer beobachtet werden. Die totale Freisetzung für U beim FPT4 Test von 0.44 % des Anfangsinventars ist etwas höher als die beobachtete beim FPT1 Test (0.12 %). Nahezu 100 % des freigesetzten U findet man in der Oberfläche unmittelbar oberhalb des geschmolzenen Brennstoffes und in der Plenum-Sektion (Korrelation mit dem Temperaturgradient). Nur wenig U findet man in der Filter-Sektion. Das gleiche Verhalten findet man auch für das Pu und die „minor Actinides“.

<b>F 3-1 (PSI)</b> $^{234-238}\text{U} = 4.7 \times 10^{-4} \%$ $^{239-242}\text{Pu} = 3 \times 10^{-5} \%$ Np, Am, Cm < DL		<b><sup>234-236, 238</sup>U (Freisetzung in %)</b>					
		<b>Anf. Bündel Inv.: 2.57 kg</b>	<b>P<sup>1-3</sup></b>	<b>F-1</b>	<b>F-2</b>	<b>F-3</b>	<b>F-4</b>
<b>F 4-2 (PSI)</b> $^{234-238}\text{U} = 1.0 \times 10^{-5} \%$ $^{239-242}\text{Pu} = 1 \times 10^{-5} \%$ Np, Am, Cm < DL		<b>Einzelfilter</b>	-	0.01	0.0021	<0.001	-
		<b>Tot. Freisetzung: 0.44 %</b>	0.43	0.011			
		<b><sup>239-242</sup>Pu (Freisetzung in %)</b>					
<b>Anf. Bündel Inv.: 27 g</b>	<b>P<sup>1-3</sup></b>	<b>F-1</b>	<b>F-2</b>	<b>F-3</b>	<b>F-4</b>	<b>F-5</b>	
<b>Einzelfilter</b>		<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	
<b>Tot. Freisetzung: ≈0.3 %</b>	0.31	< DL					
		<b><sup>237</sup>Np, <sup>241</sup>Am, <sup>244</sup>Cm (Freisetzung in %)</b>					
<b>Anf. Bündel Inv.: 1.636 g</b>	<b>P<sup>1-3</sup></b>	<b>F-1</b>	<b>F-2</b>	<b>F-3</b>	<b>F-4</b>	<b>F-5</b>	
<b>Einzelfilter</b>		<DL	<DL	<DL	<DL	<DL	
<b>Tot. Freisetzung: 0.71 %</b>	0.71	< DL					

Figur 8; Totale Freisetzung von Elementen des Brennstoffes

### **Freisetzung von Elementen der Strukturmaterialien (Massenbilanz)**

Die Gesamtmenge der freigesetzten Elemente der Strukturmaterialien ist vergleichbar mit den bereits beobachteten Werten des FPT1 Tests. Während Sn recht flüchtig erscheint (46 % des Anfangsinventars in FPT4, ca. 40 % in FPT1) sind andere Elemente wie Zr (Hüllrohr) und Re, W, und Rh (Thermoelement), wie in FPT1 nur als schwer flüchtig zu bezeichnen.

### **Diskussion der Resultate**

Die erhaltenen Resultate aus dem PHEBUS FPT4 Test („debris bed“) sind durchaus vergleichbar mit den Resultaten der vorherigen Tests FPT0, FPT1 und FPT2 mit der Brennelement-Geometrie. In allen bisherigen Tests konnte eine nahezu 100 %-ige Freisetzung von Edelgasen und der leicht flüchtigen Spaltprodukten (Cs, I) festgestellt werden. Die Freisetzung von flüchtigen Spaltprodukten (Mo, Te, Rb, Sb) ist bei allen Tests vergleichbar gross, obwohl die Freisetzung für Mo etwas höher erscheint.

Die vergleichsweise grosse Freisetzung von Ba in FPT4 Test (30 % des Anfangsinventars) ist möglicherweise auf die Abwesenheit von Fe im FPT4 zurückgeführt werden, da dadurch die Bildung von schwerflüchtigen BaZrO<sub>3</sub> und BaUO<sub>3</sub> verzögert und somit die Freisetzung von Ba am Anfang des FPT4 Tests begünstigt wird.

Obwohl die Resultate der Freisetzung von Ru mit denen aus FPT1 und FPT2 vergleichbar sind (1 – 2 % des Anfangsinventars), bleibt immer noch nicht gänzlich abgeklärte Ursache für das verhältnismässig kleine Mengen an gebildeten flüchtigen RuO<sub>4</sub> offen.

Die schwerflüchtigen Spaltprodukte (Lanthanide) sowie die Elemente des Brennstoffes (U, Np, Pu, Am, Cm) findet man praktisch ausschliesslich unmittelbar oberhalb des geschmolzenen Brennstoffes. Dies wird hauptsächlich auf eine schnelle Kondensation (Temperaturgradient) zurückgeführt.

### **PHEBUS FPT2-PTA (TASK No. 6a)**

Der dritte Test, FPT2, in der Reihe des PHEBUS F.P. Testprogramms wurde im Oktober 2000 ausgeführt. In einem FPT0 und FPT1 vergleichbaren Testreaktor-Design (vgl. Figur 9) wurde ein BR3 vorbestrahlter UO<sub>2</sub> Brennstoff (32 GWd/tU, durchschnittliche Anreicherung: 6.85 %) eingesetzt [7][8]. Der Reaktor wurde mit einem Dampfgenerator und einem PWR Containment konstruiert, so dass es ein 900 MW PWR Reaktor core (RCS) simulierte. Das Testbündel enthielt 20 LWR Brennstäbe und wie bereits in vorherigen Tests FPT0 und FPT1 einen zentralen Ag-In-Cd (SIC) Kontrollstab. Im Gegensatz zu den bisherigen Tests verlief der FPT2 Test unter dampfarmen Bedingungen (0.5 g/s) und mit dem Borsäure-Zusatz (1000 ppm BO<sub>3</sub> in Dampf).

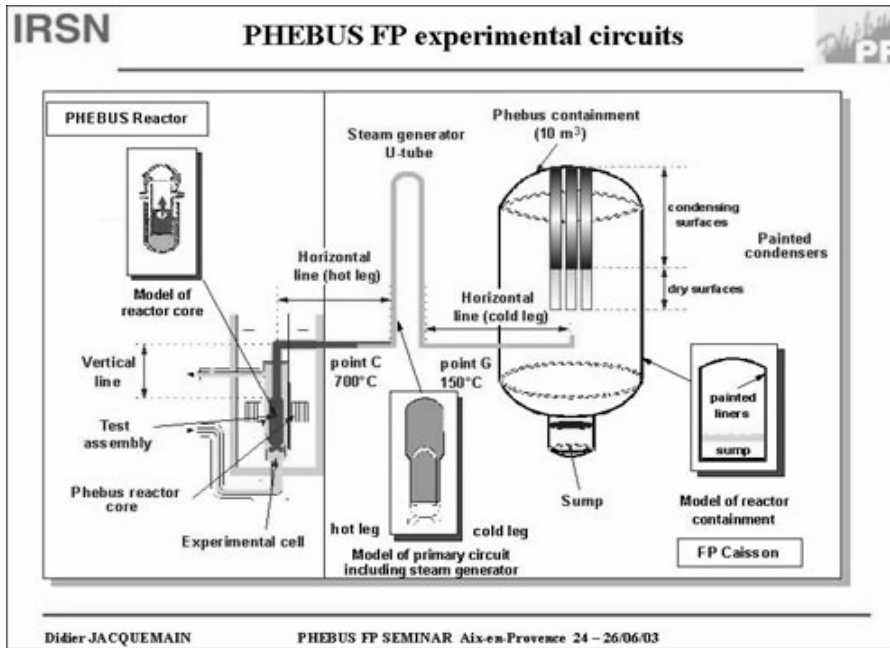
Die oberhalb des Plenums liegende „horizontal line“ wird auf 700 °C geheizt (point C) und befördert die freigesetzten Gase und Aerosole in „U-tube“, dass ein Dampferzeuger simulieren soll. Die Wände des sog. Dampferzeugers werden auf 150 °C gehalten. Die anschliessende „horizontal line“ (150 °C) führt zum Containment und simuliert den „cold leg“ des RCS.

Die Hauptziele der FPT2-PTA waren:

- Studium der Spaltproduktfreisetzung bei tiefem Druck und hoher Temperatur in einer reduzierenden (dampfarmen) Umgebung.
- Untersuchung der Auswirkung eines niedrigen Oxidationspotentials auf die chemische Speziation der freigesetzten Nuklide.
- Untersuchung der Degradation und der Umlagerung des Bündels der Brennstäbe während der Wechselwirkung mit der Schmelze aus Cladding- und Brennstoffmaterialien.

Zur Untersuchung der Freisetzung von Spaltprodukten, Komponenten des Brennstoffes und der Strukturmaterialien wurden zwei Messzonen „C“ (700 °C) und „G“ (150 °C) mit Aerosole-Auffangfiltern ausgerüstet (vgl. Figur 9).

Zur analytischen Untersuchung wurden drei Filter geliefert (vgl. Tabelle 1). In der Figur 10 ist der untersuchte Filter (2G1-01Q FIPF-718) abgebildet, welcher als einziger auftragsgemäss mit der EPMA analysiert werden musste. Die Markierungen zeigen die Stellen an denen die Probenentnahme mittels eines C-Tab's erfolgte (vgl. Figur 11). Man kann deutlich eine homogene Verteilung der Aerosole an der Filteroberfläche erkennen.

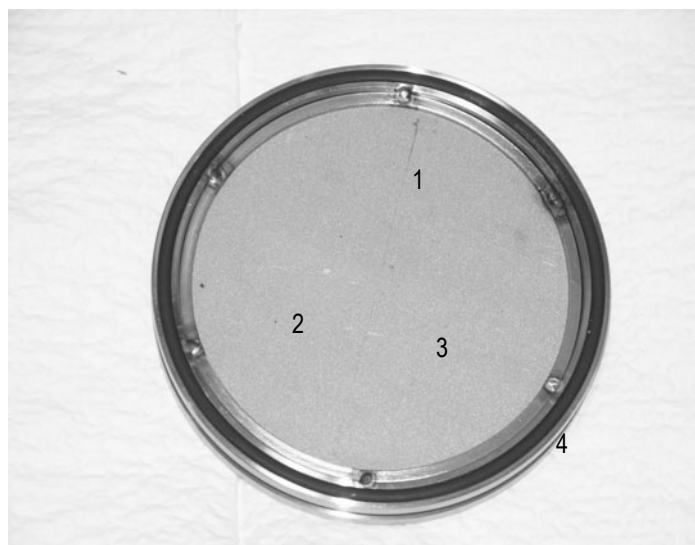


Figur 9; Instrumentierungsplan für den PHEBUS F.P. FPT2 Test

**Tabelle 1:** Bezeichnung und Charakterisierung der sequentiellen Filter

	PTA Referenz	Bezeichnung	Zeit der Probenahme*	
Doppelfilter (poral + Quarz)	2G1-01Q	FIPF 714	11:56	11:59
Einzelfilter (poral)	2G1-031	FIPF 715	12:02	12:06
Einzelfilter (poral)	2G1-051	FIPF 718	13:54	13:56

\* Abschaltung des Reaktors (zero- test time) am 12. Oktober 2000, 09:23



1 cm



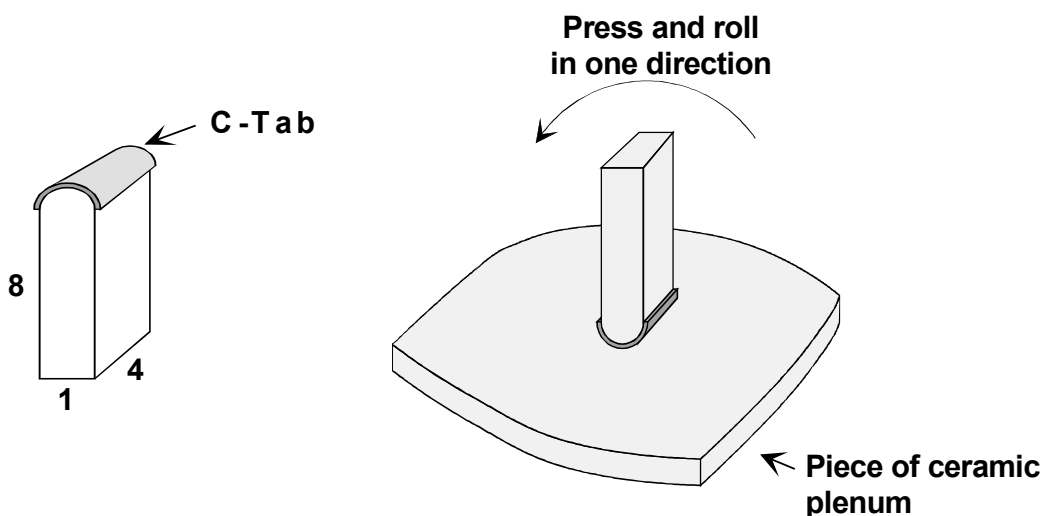
Figur 10; Filter 2G1-01Q FIPF-718, Probenahme

### Probenahme für die Charakterisierung von Aerosolen

Wegen der hohen Dosisleistung des Filters 2G1-051 FIPF-718 (30 mSv/h im Abstand von 10 cm) musste die Entnahme der Aerosolproben zur Charakterisierung mittels EPMA von verschiedenen Orten der Filteroberfläche in einer mit 10 cm abgeschirmten Kapelle des Hotlabors ausgeführt werden.

### Resultate der EPMA Untersuchungen

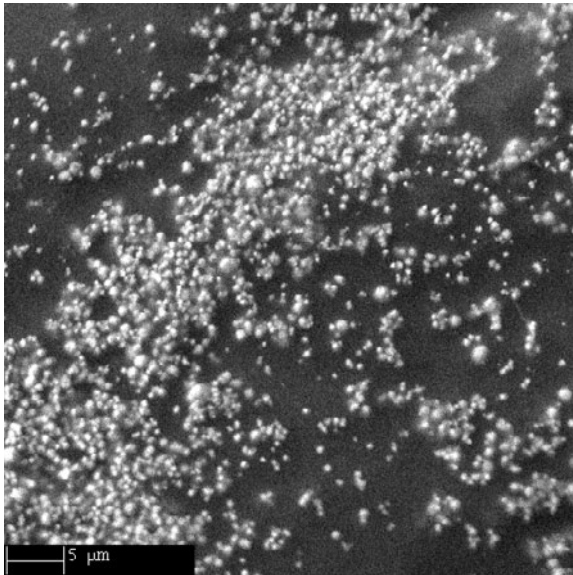
An den C-Tabs anhaftende Partikel, entnommen von den peripheren Seiten des Filters (Probenahme 1 und 4) mit kleineren Aerosol-Population, weisen eine Teilchengrösse im Bereich zwischen sub-mikrometer bis 1  $\mu\text{m}$  (vgl. Figuren 12 – 15). Die Teilchen sind vorwiegend kugelförmig. Die Aerosolteilchen aus der Mitte des Filters mit wesentlich höherer Partikeldichte (Position 2 und 3) bilden korallenähnliche Agglomerate, die eine Grösse bis 10  $\mu\text{m}$  oder mehr erreichen können (vgl. Figuren 16 – 19).



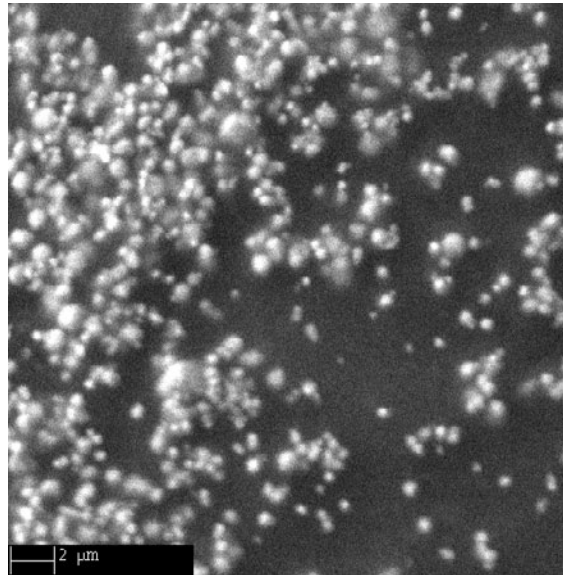
Figur 11; Schematische Darstellung der Probenahme von Aerosolen.

Die sehr ähnlichen Erscheinungsbilder von Spektren, aufgenommen an verschiedenen Positionen, wie auch die elementcharakteristischen X-ray Bilder zeigen eine sehr homogene Element-Verteilung auf der Filteroberfläche. Eine etwas nähere Betrachtung der X-ray mapping Bilder deutet auf eine gewisse Affinität zwischen Elementen in gleichen Partikeln wie Cs – Mo; Sn – Te; Ag – In – Cd; Fe – Ni und Re – W (vgl. Figuren 20–23). Ag, In und Cd sind eindeutig die häufigsten Elemente (Strukturmaterial von SIC-Kontrollstab). Daneben wurden in grösseren Konzentrationen auch noch die Spaltprodukte Cs, Sn und Mo gefunden. In kleineren Konzentrationen findet man noch Re, Te und Fe, während W, Ni, Ba, Cr und I nur als Spuren-Elemente vorkommen. Die meisten Spaltprodukte wie Rb, Sr, Ru, Pd, Sb und die Lanthanide sowie die Elemente des Brennstoffes wie U, Np, Pu, Am und Cm sind, wenn überhaupt, in Konzentrationen präsent, die unterhalb der Nachweisgrenzen von ca. 1 % liegen (vgl. Figur 24).

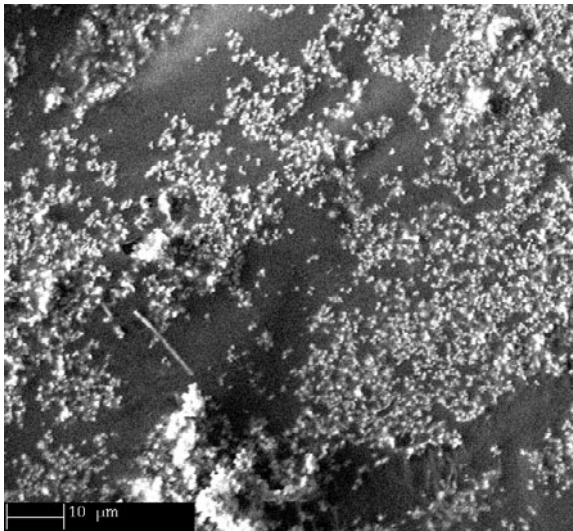
Als äusserst interessante Erscheinung kann das Vorhandensein von grösseren kristallinen Teilchen festgehalten werden, die praktisch als reine Cs-Teilchen bezeichnet werden können (vgl. Figuren 25 und 26). In welcher kristallinen Form Cs hier vorliegt, konnte mit der hier verwendeten Methode nicht sicher festgestellt werden ( $\text{CsOH?}$ ,  $\text{Cs}_2\text{O?}$ ). Die Existenz von  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  kann für diese Cs-reiche Partikel ausgeschlossen werden, da die X-Ray Mapping-Bilder eindeutig das Fehlen von Mo zeigen (vgl. Figuren 22 und 23). Die Bildung von mit Cs angereicherten Einkristallen kann möglicherweise durch eine Kondensation der Gasphase mit anschliessender Rekristallisation im „cold leg horizontal line“ (point G, 150 °C) erklärt werden.



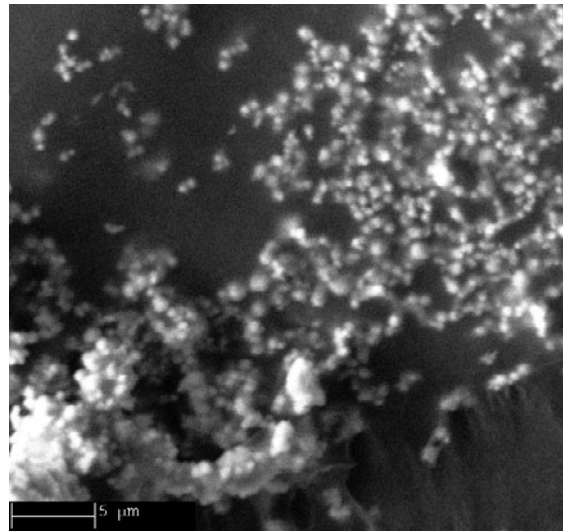
Figur 12; SEM Bild von der Position 1



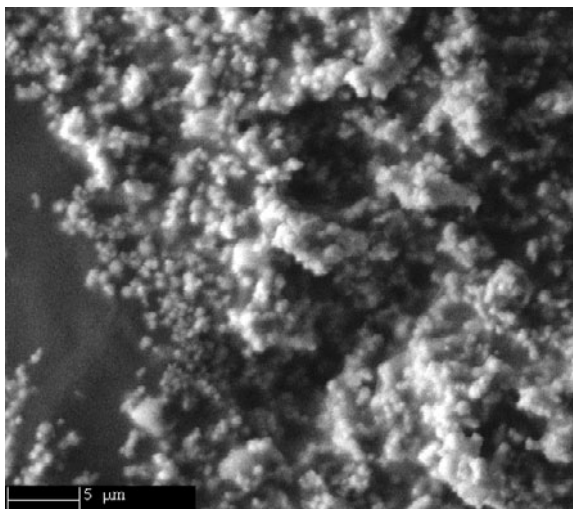
Figur 13; SEM Bild von der Position 1



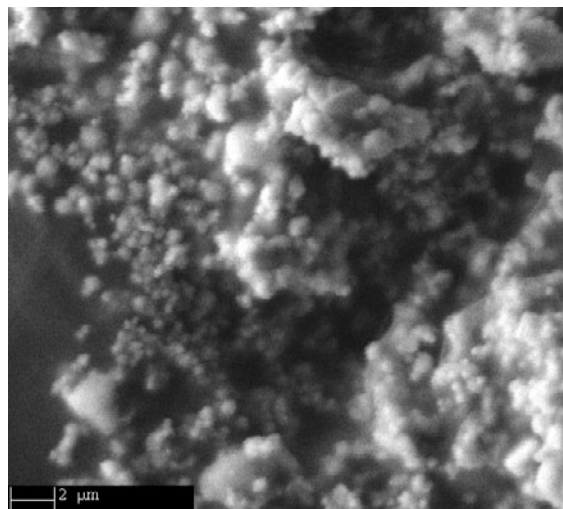
Figur 14; SEM Bild von der Position 4



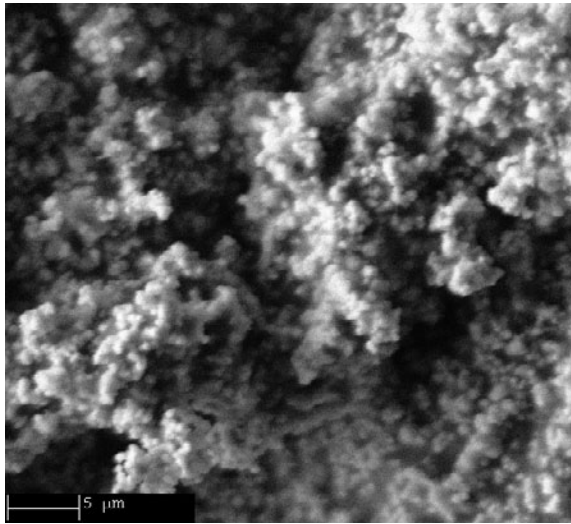
Figur 15; SEM Bild von der Position 4



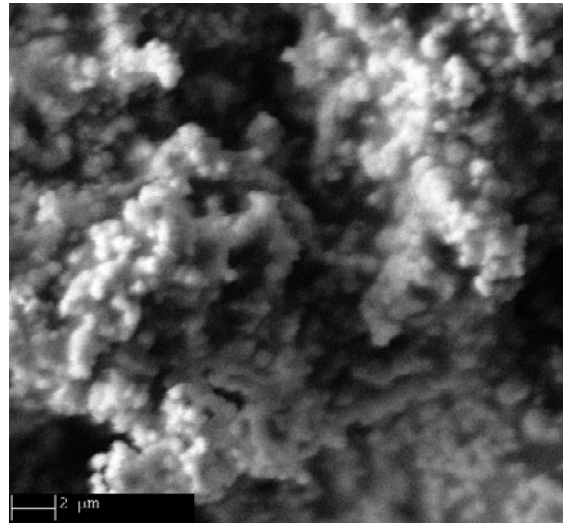
Figur 16; SEM Bild von der Position 2



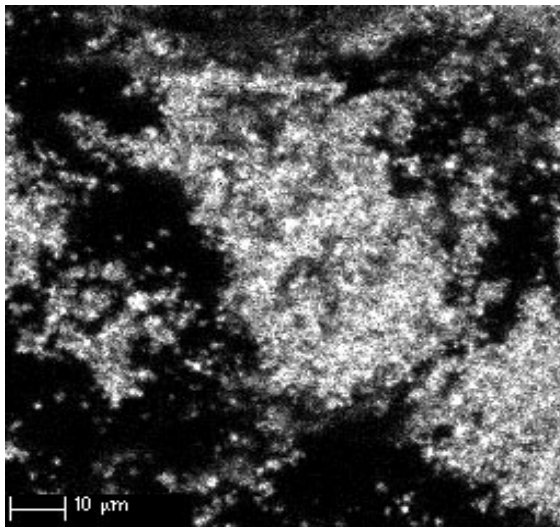
Figur 17; SEM Bild von der Position 2



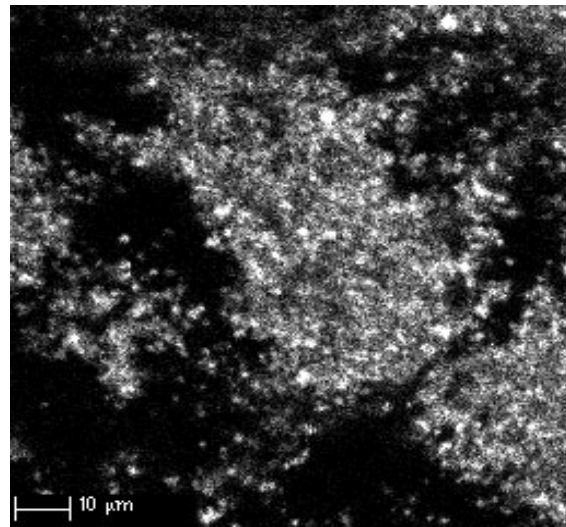
Figur 18; SEM Bild von der Position 3



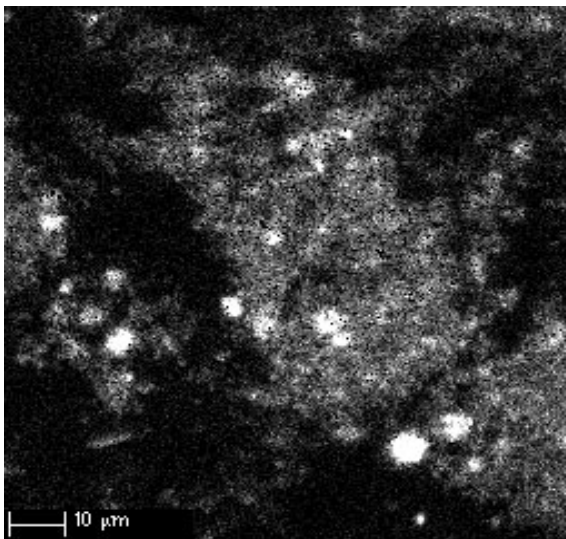
Figur 19; SEM Bild von der Position 3

**Ag**

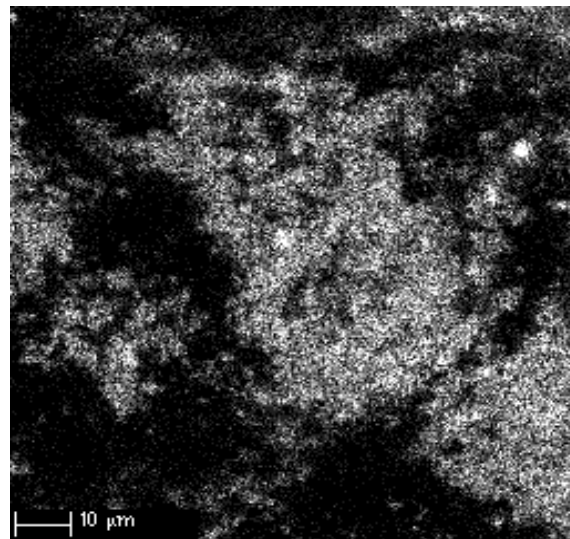
Figur 20; Ag-Verteilung in Pos. 2 (X-ray-Abb.)

**In**

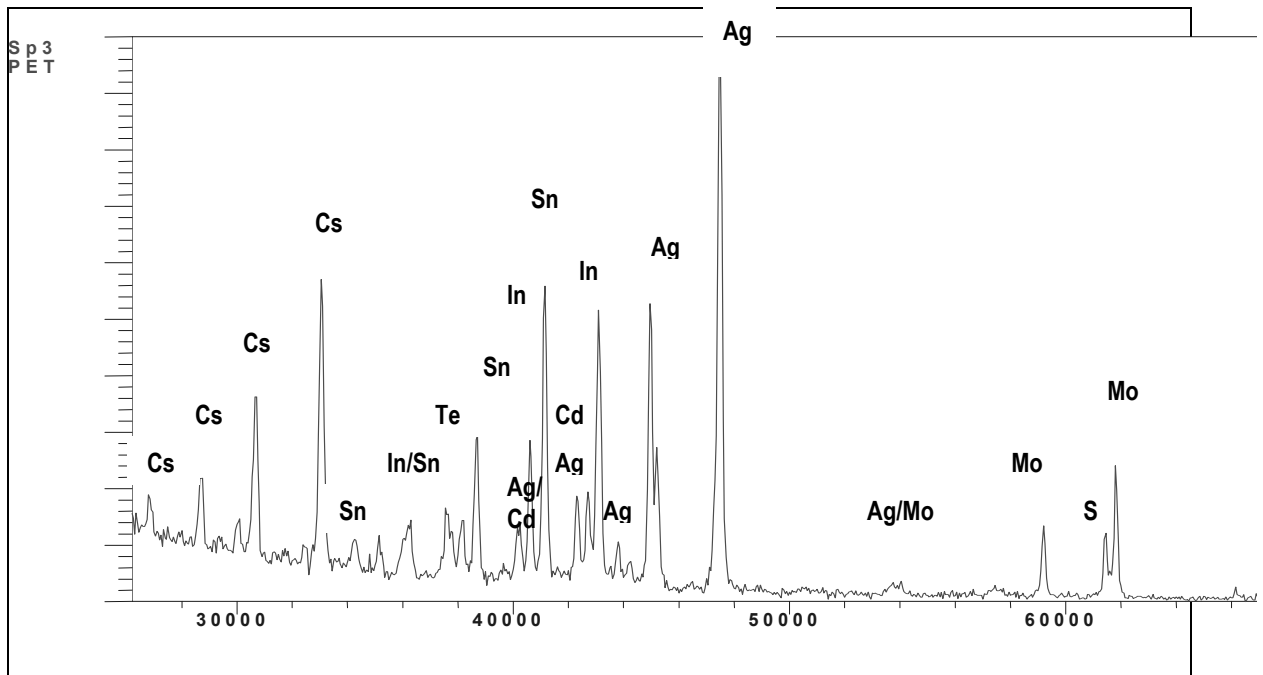
Figur 21; In-Verteilung in Pos. 2 (X-ray-Abb.)

**Cs**

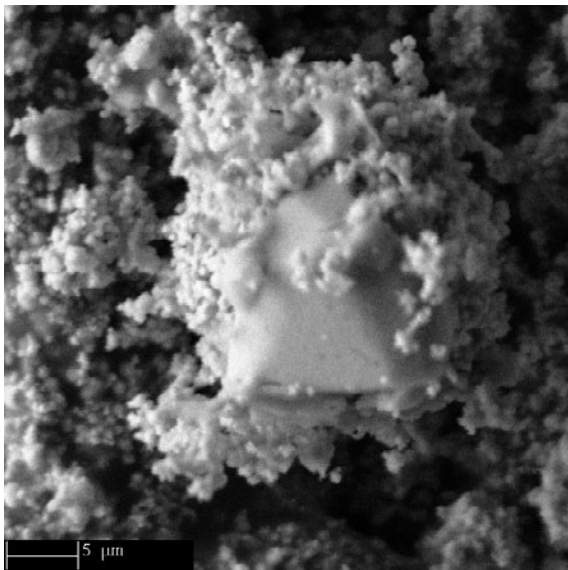
Figur 22; Cs-Verteilung in Pos. 2 (X-ray-Abb.)

**Mo**

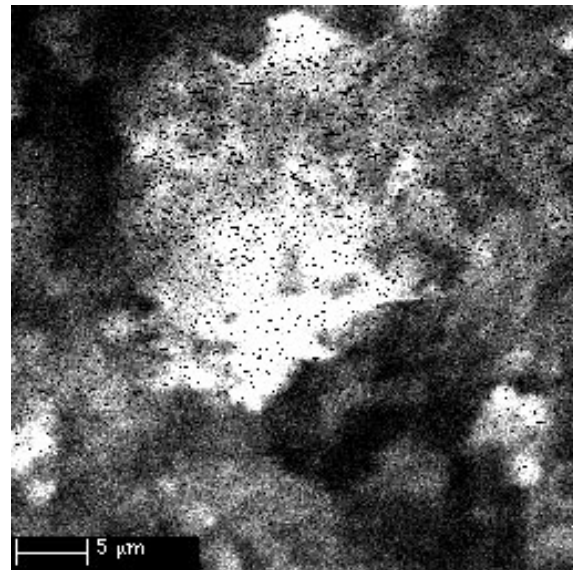
Figur 23; Mo-Verteilung in Pos. 2 (X-ray-Abb.)



Figur 24; XRF Spektrum der Position 2



Figur 25; Cs Partikel aus der Position 3



**Cs**

Figur 26; Cs-Verteilung in Pos. 3, (X-Ray Abb.)

### ***Diskussion der Resultate***

Obwohl zurzeit noch nicht alle Analysenergebnisse, insbesondere der Filteranalysen, vorliegen, kann aufgrund von provisorischen Resultaten der zerstörungsfreien Messungen an verschiedenen Orten der Anlage eine Korrelation zwischen der Freisetzung und dem Transport von Spaltprodukten und Elementen der Strukturmaterialien mit den Bündel-spezifischen Degradierungsvorgängen (Zircaloy Cladding Oxidation, Materialverschiebung) festgehalten werden.

Wie bereits bei den vorgängigen Tests kann auch im FPT2 Test starke Freisetzung von flüchtigen Spaltprodukten (I, Cs, Te, Sb, Mo, Xe, Kr) beobachtet werden. Grössere Mengen dieser Elemente erreichen das Containment. Ein signifikanter Unterschied zum FPT1 Test ist die Existenz von Cs, Te und In im FPT2 in der Gasphase. Ob dies der Präsenz der Borsäure im FPT2 zugeordnet werden kann, werden möglicherweise die noch ausstehenden Analysenergebnisse von Filtern klären

können. Die Freisetzung von Ba in FPT2 (Bündel-Geometrie) scheint wesentlich kleiner zu sein als in FPT4 (debris bed) und kann Ba als nur schwach flüchtiges Spaltprodukt angesehen werden.

Die Ablagerung von Aerosolen in FPT2 Test findet vorwiegend im „hot lag“ Sektor des Reaktors, dass möglicherweise auf die dampfärmeren Bedingungen in diesem Test zurückzuführen ist. Charakteristisch für den FPT2 Test ist die kleine Teilchengrösse der Aerosole ( $< 1 \mu\text{m}$ ).

### 3 Nationale und internationale Zusammenarbeit

Das Projekt wurde stets in engem Kontakt mit allen für die Sicherheit zuständigen Institutionen in der Schweiz durchgeführt. Die Resultate der Schweizer In-Kind Forschungsprojekte werden in regelmässigen Konsultationen mit Vertretern der HSK und aller schweizerischen Kernkraftwerke vorgestellt und diskutiert.

Die hier beschriebenen Forschungsbeiträge sind Bestandteile des international unterstützten **PHEBUS FP** Programms zur Reaktorsicherheit. Die Resultate werden regelmässig an PHEBUS FP Informationsmeetings (CCIC, BIC, CACIC) sowie an jährlichen PTA Meetings (CEA/Saclay, IRSN, AEAT, ITU) kritisch beurteilt und die gesammelten Erfahrungen ausgetauscht.

### 4 Ausblick 2004

#### FPT2-PTA

Die massenspektrometrischen Analysen und der Abschlussbericht sollten bis Ende 2003 abgeschlossen werden. Wegen der Personalprobleme konnte bis anhin nur ein kleiner Teil der Untersuchungen (Messungen mit externer Kalibration vom Filter 2G1-01Q FIPF-714). Diese Verspätung wurde der PHEBUS Projektleitung kommuniziert und ein neuer Arbeitsplan unterbreitet. Demnach sollen die restlichen massenspektrometrischen Analysen bis Ende April 2004 abgeschlossen und der Abschlussbericht bis spätestens Ende Mai erstellt werden.

#### FPT2-PTA EXTENSION PROGRAMM

Die Ende November 2003 angelieferten zusätzlichen Filterproben, die ursprünglich an der AEAT in England analysiert werden sollten, werden, in Absprache mit der PHEBUS Projektleitung, im Rahmen des bestehenden FPT2-PTA Teilprojektes als Extension Programm analysiert. Es wurde ein neues „Statement of Work“ ausgearbeitet und von den PHEBUS Verantwortlichen in Cadarache und dem PSI unterschrieben.

Der neue Arbeitsplan sieht wie folgt aus:

- Transport von Proben Dezember 2003 (Verspätung von bereits ca. 2-3 Monaten!)
- Auslaugung von Filtern und anschliessende  $\gamma$ -spektroskopische Messungen bis ca. Ende April 2004.
- massenspektrometrischen Analysen bis Ende Juli 2004.
- Abschlussbericht erstellt bis Ende August 2004.

#### FPT4-PIE

Der Transport der Proben ist für Anfang 2004 geplant. Die offerierten metallographischen, SIMS und EPMA Analysen sind in der ersten und die ICP-MS Analysen in der 2. Hälfte des Jahres 2004 geplant [10].

### 5 Referenzen

- [1] Gregoire Anne-Cécile, Gregoire Gilles, Morassano Bruno, Jacquemain Didier, Cochaud Jean-Jacques; Fission Products and Actinide Release from the Debris Bed test Phebus FPT4,



- [2] Restani Renato, Kopajtic Zlatko, Gavillet Didier; Phebus FPT4-PTA: Electron Probe Microanalyses of Filter Cartridges, TM-43-01-15 Rev.0.
- [3] Z. Kopajtic, I. Günther-Leopold, H.-P. Linder; "PHEBUS FPT4-PTA, Summary of the PSI analytical work", TM-43-03-16, May 2003.
- [4] André B., Ducros G., Lévêque J.P., Maro D., Osborne M.F., Lorenz R.A.; Nucl. Technol., 114, (1996) 23.
- [5] Ducros G., Malgouyes P.P., Kissane M.P., Boulaud D., Durin M.; Fission products release and fuel behaviour under severe accidental conditions: synthesis of the VERCORS 1-6 experimental program, International Topic Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park CITY, Utah, 10-13 April 2000, 1100 (2000).
- [6] Dubourg R., Taylor P.; A qualitative comparison of Barium behaviour in the PHEBUS FPT0 test and analytical tests, Journal of Nuclear Materials 294 (2001), P. 32-38.
- [7] Jacquemain D., Zabiego M., Cornu B., Garnier Y.; Iodine Behaviour in Phebus FPT2, Comparison with Previous Phebus Tests, Proceedings of the 5<sup>th</sup> Technical Seminar of the Phebus FP Programme, June 24.-26. 2003.
- [8] Zabiego M., Jacquemain D., Pantera L., March P., Ragagli E., Zavaleta P., Cochaud J.J., Cornu B., Garnier Y., Girard J.M.; Fission Product and Control-rod/Structure Material Behaviour in FPT2, Proceedings of the 5<sup>th</sup> Technical Seminar of the Phebus FP Programme, June 24.-26. 2003
- [9] R. Restani, Z. Kopajtic; "PHEBUS FPT2-PTA: Electron Probe Micro Analyses of Filter Cartridges", TM-43-03-10, 2. Juni 2003.
- [10] Offer for PIE on pieces of the FPT4 bundle remnant, Offer\_PIE\_FPT4-2002-09-01.doc.



Datum: Anfang März 2004  
 Von: C. Humbel Haag, HSK  
 G. Ledergerber, KKL

## Begutachtung 2003 für das OECD Halden Reactor Projekt

### Einleitung

Das OECD Halden Reactor Project dient der Zusammenarbeit von 18 Ländern in Forschung zur Reaktorsicherheit. Die Schweiz ist federführend vertreten durch die HSK und nimmt am 3-Jahresprogramm 2003-2005 teil. Schwerpunkte sind auf der einen Seite Untersuchungen zum Verhalten von Brennstoff und Materialien unter normalen und transienten Bedingungen und auf der anderen Seite Untersuchungen mit dem Ziel, quantitative Kenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit und der Grenzen von Menschen bei der Überwachung und Steuerung komplexer Systeme zu erlangen.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

2003 ist das erste Jahr der neuen Programmperiode 2003 – 2005. Das im Bericht „Halden Reactor Project Program Proposal 2003“ beschriebene Programm für 2003 ist weitgehend bearbeitet worden. Eine Einschränkung gilt es für die Brennstoff- und Materialforschung zu machen. Wegen Reparaturarbeiten am Primärkreislauf hatte der Halden-Reaktor nur etwa die Hälfte der ursprünglich vorgesehenen Verfügbarkeit. Die Bestrahlungsversuche haben sich entsprechend verzögert, während Nachbestrahlungsuntersuchungen und Vorarbeiten für neue Experimente im Wesentlichen wie geplant fortgeführt wurden. Rund 280 Personen beschäftigten sich mit dem Projekt im Jahr 2003. In beiden Projektbereichen „Fuels and Material“ und „Man-Machine Systems MMS“ war die Personalsituation ausgeglichen und befriedigend.

### Fuels & Materials Research

Im Jahr 2003 waren mehrere Experimente in den Forschungsreaktor eingesetzt, in denen keramische Brennstoffe (UO<sub>2</sub>, MOX, Inert Matrix Fuel) und Hüllrohrmaterialien bezüglich ihres Betriebsverhaltens bei hohem Abbrand untersucht werden. Das Inert Matrix Experiment, für welches das PSI den Brennstoff produziert hat, wurde planmässig weiterbestrahlt. Weiter wurden für Reaktorstrukturen verwendete rostfreie Stähle bezüglich Risswachstum unter Bestrahlung sowie strahlungsinduzierten Veränderungen der Eigenschaften untersucht. Einen wichtigen Platz im Experimentalprogramm nimmt die Vorbereitung einer Serie von LOCA-Versuchen an Brennstoffen aus kommerziellen Reaktoren ein, in der ein erster Testlauf des Systems mit einem frischen Brennstab erfolgte. G. Ledergerber, KKL, hatte 2003 den Vorsitz in der Halden Programm-Gruppe „Fuel and Material“ und wurde per 2004 zum Vorsitzenden der ganzen Programm Gruppe gewählt.

### Man-Machine Systems Research

Im Jahr 2003 wurde im HAMMLAB eine Versuchsserie abgeschlossen, in welcher der Zusammenhang zwischen Automatisierungsgrad beim Ausführen von Prozeduren und Operateurleistung untersucht wurde. Weiter wurden verschiedene Systeme zur Unterstützung des Betriebs im HAMMLAB

gestestet. Dazu gehören die Systeme TEMPO (thermal performance monitoring and optimisation) und PEANO (on-line Kalibrierung von Sensoren), um den Betrieb und die Wartung wirkungsvoller durchzuführen. Im Zusammenhang damit wurde die Benutzergruppe HOLMUG (Halden On-Line Monitoring User Group) gegründet, in der auch Kraftwerksbetreiber vertreten sind.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Beteiligung am Halden Reactor Projekt erlaubt der HSK auf aktuelles Wissen und Forschungs- und Entwicklungsergebnissen in den Bereichen Brennstoff- und Materialverhalten sowie Human Factors zu greifen. Es liegt damit eine international abgesicherte wissenschaftliche Basis vor, die für die Erstellung von Kriterien und Richtlinien in diesen beiden Bereichen verwendet werden kann.

Es findet laufend reger Informationsaustausch und ein wertvoller Know-how Transfer zwischen dem Halden Projekt, der HSK, dem PSI und den Schweizer Betreibern statt.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Versuche sollen 2004 der Programmgruppe als so genannte „White papers“ vorgelegt werden, so z.B. ein neuer Hüllrohrkorrosionstest unter Mitwirkung des PSI, in Reaktor Brennstoff- und Materialkriechuntersuchungen sowie der Aufbau eines Wasserkreislaufes für den Aufbau von „Crud“ bei Siedewasserreaktoren. Der erste LOCA-Test (Loss of Coolant Accident) mit Hochabbrandbrennstoff aus Gösigen und der erste Versuch zu FGR von Hochabbrandbrennstoff aus Leibstadt sollen durchgeführt werden. Ein erster Stab aus dem Inert Matrix Fuel Experiment wurde in die Hotzellen in Kjeller verbracht und soll untersucht werden. Details dazu finden sich im Vorschlag für 2004<sup>1</sup>.

Im MMS Programm werden die Arbeiten gemäss dem Vorschlag für die Programmperiode 2003 - 2005 fortgeführt. Zwischenergebnisse dieser Programmperiode und der Zusammenfassungen sowie Auswertungen von Bestrahlungsversuchen werden im Mai 2004 am Enlarged Halden Program Group Meeting in Sandefjord/Norwegen vorgestellt.

Vom 31. August – 3. September 2004 wird eine weitere Summer School zum Thema: „Fuel Behaviour Modelling“ stattfinden.

Das nächste reguläre Treffen der Programmgruppe wird im November 2004 in Leibstadt und Zurzach im Kanton Aargau stattfinden.

---

<sup>1</sup> HP-1148 Halden Reactor Project Programme Proposal for 2004.

# OECD Halden Reactor Project

## Nuclear Safety and Reliability

### Man-Machine-Systems Research

W. Wiesenack, F. Øwre  
OECD Halden Reactor Project  
1750 Halden, Norwegen  
[www.ife.no/hrp](http://www.ife.no/hrp)  
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer  
Dauer des Projekts 2003 - 2005

#### ZUSAMMENFASSUNG

Das OECD Halden Reactor Project ist eine Zusammenarbeit von 18 Ländern in der Forschung zur Reaktorsicherheit. Die Schweiz, federführend vertreten durch die HSK, nimmt am 3-Jahresprogramm 2003 – 2005 teil. Schwerpunkte sind auf der einen Seite Untersuchungen zum Verhalten von Brennstoffen und Materialien unter normalen und transienten Bedingungen und auf der anderen Seite Untersuchungen mit dem Ziel, quantitative Kenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit und der Grenzen von Menschen bei der Überwachung und Steuerung komplexer Systeme zu erlangen. Dabei werden als wichtigste Einrichtungen der Halden-Reaktor und das Halden Man-Machine-Laboratory (HAMMLAB) eingesetzt.

Im Halden-Reaktor waren im Berichtszeitraum mehrere Experimente installiert, in denen keramische Brennstoffe ( $UO_2$ , MOX, inert matrix) und Hüllrohrmaterialien bezüglich ihres Betriebsverhaltens untersucht werden. Typische Messgrößen sind Brennstofftemperatur, Spaltgasfreisetzung und Dimensionsänderungen von Brennstoff und Hüllrohr. Ein typisches Beispiel ist das inert Matrix Experiment, für welches das PSI den Brennstoff produziert hat und das planmässig weiterbestrahlt wurde. Weiterhin werden für Reaktorstrukturen verwendete rostfreie Stähle bezüglich Risswachstum unter Bestrahlung sowie strahlungsinduzierten Veränderungen der Eigenschaften untersucht. Einen wichtigen Platz im Experimentalprogramm nimmt die LOCA-Serie ein, in der ein erster Testlauf des Systems mit einem unbestrahlten Brennstab erfolgte.

Im Bereich Man-Machine Systems Research wurde im HAMMLAB eine Versuchsserie abgeschlossen, in der der Zusammenhang zwischen Automatisierungsgrad beim Ausführen von Prozeduren und Operateurleistung untersucht wurde. Weiterhin wurden eine Reihe von Systemen zur Unterstützung des Betriebs im HAMMLAB getestet oder auf Daten aus Kernkraftwerken angesetzt. Dazu gehören die Systeme TEMPO (thermal performance monitoring and optimisation) und PEANO (on-line Kalibrierung von Sensoren) zum Effektivisieren von Betrieb und Wartung. Im Zusammenhang damit wurde die Benutzergruppe HOLMUG (Halden On-Line Monitoring User Group) gegründet, in der auch Kraftwerksbetreiber vertreten sind.

## Projektziele

Das OECD Halden Reactor Project ist eine internationale Zusammenarbeit mit dem Ziel, zur sicheren und wirtschaftlichen Nutzung der Kernenergie beizutragen. Experimentelle Arbeiten und Studien benutzen den Halden Reaktor (HBWR) und das Halden Mensch-Maschine Laboratorium (HAMMLAB) sowie das Virtual Reality Studio als wichtigste Einrichtungen.

Darauf aufbauend umfasst das Programm im Bereich der Untersuchungen zum Brennstoff- und Materialverhalten experimentelle Aktivitäten zum Verhalten verschiedener Brennstoffe im Normalbetrieb und bei Transienten (LOCA) mit Schwerpunkt auf Hochabbrand. Bei den Untersuchungen zu Fragen der Lebensdauer von Kernkomponenten steht das Spannungsrissskorrosionsverhalten von im Reaktorkern eingesetzten Strukturmaterialien im Vordergrund. Bezüglich dieser Untersuchungsbereiche waren im Jahr 2003 16 zum Gemeinschaftsprogramm gehörende Experimente im Halden Reaktor installiert. Dabei werden in starkem Masse vorbestrahlter, re-instrumentierter Brennstoff sowie Materialien mit hohen Neutronen-Fluenzen aus kommerziellen Leichtwasserreaktoren eingesetzt.

Die Sicherheitsforschung im Programmbereich „Man-Machine Systems Research“ hat zum Ziel, quantitative Kenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit und der Grenzen von Menschen bei der Überwachung und Steuerung komplexer Systeme zu erlangen. Dazu werden Untersuchungen zum Verhalten von Operateuren in verschiedenen Situationen durchgeführt, wobei auch die Effizienz von rechnergestützten Hilfsmitteln und Arten der Informationsdarstellung beurteilt werden. Die Zuverlässigkeit automatisierter Systeme und sicherheitskritischer Software wird in diesem Zusammenhang ebenfalls untersucht und auch, wie Operateure mit dem Ausfall solcher Systeme zurechtkommen (human centered automation). Das Erlangen von Daten zur quantitativen Beurteilung von ‚human reliability‘ hat ein besonders Gewicht im Forschungsprogramm. Weiterhin werden Arbeiten zur Überwachung und Optimierung des Anlagenbetriebs durchgeführt.

Die geplanten Arbeiten sind allgemein im Rahmenprogramme für den Zeitraum 2003 – 2005 festgelegt und im Einzelnen im detaillierten Programm für das Jahr 2003 /1/ beschrieben.

## Durchgeführte Arbeiten und erreichte Ergebnisse

### MAN-MACHINE-SYSTEMS RESEARCH

Der Bereich „Man-Machine Systems Research“ und insbesondere die Arbeiten im HAMMLAB umfassen experimentelle Untersuchungen des Zusammenspiels zwischen Operateuren und Kontroll- und Überwachungssystemen, um den Einfluss von neuer Technologie sowie neuen Überwachungssystemen, Darstellungsformaten und Betriebsprozeduren auf die Sicherheit beim Betrieb von Kernkraftwerken zu erfassen. Unter den wichtigsten Arbeiten im Berichtszeitraum können genannt werden:

- Durchführung und Analyse von Experimenten zur Fähigkeit der Operateure, die Kontrolle bei Störfällen zurückzugewinnen. Dabei wurde 8 LOCA-Transienten benutzt, die sich durch Zeitdruck und auslösende Fehlerursachen unterschieden. Eine statistische Analyse der Versuchsdaten bestätigt, dass die Fähigkeit, sicherheitskritische Aufgaben auszuführen, in kognitiv komplexen Szenarien (hoher Zeitdruck, hohe Informationsbelastung, Maskierung wichtiger Information) abnimmt.
- Abschluss der Experimentserie über verschiedene Automatisierungsgrade bei der Ausführung von Prozeduren und die Auswirkung auf Leistung und Situationsverständnis von Operateuren. Für die Experimente wurden der SWR-Simulator HAMBO und schwedische Operateure benutzt. Ein Abschlussbericht wird im Mai 2004 vorliegen.

- Eine Literaturstudie zum Status der Wissensverwaltung (knowledge management) in der Kerntechnik und ein Workshop zu diesem Thema wurden durchgeführt. Geplant ist die Einrichtung eines Webportals, um die Erkenntnisse aus diesem Bereich des Forschungsprogramms besser an die Mitgliedsorganisationen zu vermitteln.
- Prototypen von 'ökologischen', funktionsorientierten und aufgabebasierten displays sind in der Entwicklung und werden 2004 im HAMMLAB getestet werden.
- Tests von Methoden und Ausrüstungen für die Anwendung in der sogenannten erweiterten Wirklichkeit (augmented reality) im Zusammenhang mit Wartung und Betrieb. Die Basis ist eine Kombination von tragbaren Rechnern, drahtlosem Datentransfer, Positionsbestimmung auf Ultraschallbasis und VR-Technologie. Besonderes Gewicht wird dabei auf die Sichtbarmachung des Strahlungsfeldes im Arbeitsbereich gelegt.
- Das Signalvalidierungssystem PEANO wurde weiterentwickelt und mit Daten aus Kernkraftwerken mit vielversprechendem Ergebnis erprobt. Das Ziel ist ein System, das die Anforderungen der US NRC an ein on-line Kalibrierungssystem erfüllt (SER-93653).
- Das system TEMPO (thermal performance monitoring and optimisation) wurde weiterentwickelt. Pilotinstallationen in verschiedenen Kernkraftwerken sind in der Vorbereitung.
- Der 'Halden Prover' liegt nun in Versionen für UNIX und MS-Windows vor. Dieses System wird im Rahmen von Projekten mit TÜV und Istec in Deutschland (Entwicklung digitaler Kontrollsysteme) und EDF (fehlertolerante und fehlersichere Software) eingesetzt.

#### **NUCLEAR SAFETY AND RELIABILITY**

Das Programm im Bereich der Untersuchungen zum Brennstoff- und Materialverhalten umfasste im Berichtsjahr insgesamt 16 Experimente im Haldenreaktor. Der Reaktor hatte im Jahre 2003 eine eingeschränkte Verfügbarkeit auf Grund von Reparaturarbeiten am Primärsystem, und einige Experimente warten im Kern auf die erstmalige Bestrahlung. Bei den meisten Experimente werden betriebsrelevante Grössen wie Brennstofftemperatur, Stabinnendruck, Längenänderungen und Risswachstum on-line erfasst und zur weiteren Auswertung bereitgestellt. Das bedeutendste 2003 ausgeführte Experiment war wohl der erste LOCA-Test, der zunächst zu Übungszwecken mit einem unbestrahlten Brennstab erfolgte. Von der Vielzahl der insgesamt gewonnenen Ergebnisse sollen genannt werden:

- Weitere Bestrahlung von Gd-Brennstoff in IFA-636. Dieses Experiment enthält neun Einzelstäbe, die in zwei Höhen angeordnet sind. Dabei werden jeweils ein UO<sub>2</sub>-Stab und ein U-Gd-Stab mit gleicher Instrumentierung gepaart. Ein weiterer Stab dient der Bestimmung der Leistungsverteilung. Der bisher erreichte Abbrand liegt im Bereich 25 - 32 MWd/kgUO<sub>2</sub>. Die hauptsächlich von der Instrumentierung ableitbaren Ergebnisse zeigen keine Nachverdichtung des U-Gd-Brennstoffes und ein Brennstoffschwellen von ca. 0,6%/10MWd/kg unabhängig vom Brennstofftyp.  
U-Gd-Brennstoff ist von wachsendem Interesse auch für Druckwasserreaktoren. Die Planung eines Folgeexperiments ist deshalb 2003 vorangetrieben worden, u.a. mit einem 'white paper' zur Definition der Testmatrix, Designstudien und nuklearen Berechnungen.
- Bestrahlung verschiedener Brennstoffe (UO<sub>2</sub> mit und ohne Zusätze zur Beeinflussung der Korngrösse, homogener und inhomogener MOX-Brennstoff) zur Erzeugung der sogenannten „Rimstruktur“ (Abbrandziel 100 MWd/kg). Der Brennstoff hat Scheibenform, wobei durch die Anordnung zwischen Molybdänscheiben eine gleichmässige Temperatur erreicht wird. Die Analyse von freigesetzten Spaltprodukten (gas flow measurements) erlaubt Rückschlüsse auf den Diffusionskoeffizienten in den verschiedenen Brennstoffen. Ausserdem werden Brennstoffverdichtungs- und -schwelldaten gewonnen, die wegen der gleichmässigen Temperatur und grossen Auflagefläche wesentlich eindeutiger sind als vergleichbare Daten von Brennstoff in Tablettenform. Die insgesamt 12 Segmente haben einen durchschnittlichen Abbrand von ca. 50 MWd/kg erreicht.

- Betriebsverhalten von Inertmatrix-Brennstoff, d.h. vom PSI hergestelltes stabilisiertes Zirkoniu-  
moxyd als Trägermaterial für Plutonium. Während der Bestrahlung werden die Brennstofftem-  
peratur, das Dimensionsverhalten sowie der Stabinnendruck (Spaltgasfreisetzung) gemessen.  
Im Dezember 2002 wurde das Testelement umplatziert, um durch Leistungserhöhung den  
Brennstoff den hohen Anforderungen moderner Beladungsstrategien zu unterwerfen. Diese  
Massnahme führte zu einem deutlichen Anstieg der Spaltgasfreisetzung und damit des Stabin-  
nendruckes. Im Juni 2003 wurde ein Stab entladen, um nach einiger Abklingzeit Nachbestrah-  
lungsuntersuchungen unterworfen zu werden. Die Instrumentierung arbeitet weiterhin zuver-  
lässig.
- Durchführung eines ersten Testlaufs in der Experimentserie zum LOCA-Verhalten von Stäben  
mit hohem Abbrand. Zunächst wurden die blow-down-Eigenschaften des Systems bei Betriebs-  
temperatur und Nullleistung untersucht. Anschliessend wurden sechs Läufe mit unterschiedli-  
chen Kombinationen von Stabileistung und elektrischer Heizleistung durchgeführt, wobei die  
maximale Hüllrohrtemperatur von 800 C auf 1100 C gesteigert wurde. Alle Versuche verliefen  
sehr zufriedenstellend und ohne Komplikationen. Die Versuchserie wird in vorbildlicher Weise  
von Seiten der Schweiz unterstützt. Zum einen hat das PSI Vorausrechnungen durchgeführt,  
mit deren Hilfe eine Voreinstellung der Heizleistung für ein vorgegebenes Temperaturziel erfol-  
gen konnte. Zum anderen stammen einige der im weiteren Verlauf einzusetzenden Stäbe aus  
dem Kernkraftwerk Leibstadt. Die Serie wird mit einem zweiten unbestrahlten Stab fortgesetzt  
werden, jedoch mit hohem Vorinnendruck und daraus folgendem Ballooning. Gegen Ende  
2004 wird dann erstmals ein vorbestrahlter Stab verwendet werden.
- Kriechen von Hüllrohrmaterialien unter wechselnden Spannungen. Dieses Experiment wurde  
Mitte 2002 begonnen und hat bisher ca. 6000 Betriebsstunden erlebt. Die eingesetzten Materi-  
alien sind Zry-2, M5, Zirlo und Zr-1%Nb. Die Segmente können durch ein externes System mit  
verschiedenen Drücken beaufschlagt werden, sodass sowohl Kriechen nach innen als auch  
nach aussen eingestellt werden kann. Die Dimensionsänderungen werden während des Be-  
triebs mit einem beweglichen Messfühler (diameter gauge) erfasst. Die Auswertung der noch  
beschränkten Datenmenge (geplant sind 15000 Betriebsstunden) zeigt den Einfluss des Neut-  
ronenflusses auf das sekundäre Kriechen sowie Unterschiede zwischen den einzelnen Mate-  
rialien.
- Weiterführung der Untersuchungen zum Risswachstum in rostfreien Stählen mit hohen Fluen-  
zen. Die zwei Experimente, jeweils unter Siede- und Druckwasserbedingungen, enthalten Pro-  
ben in der Form von „compact tension specimen“, die mit variablen Kräften (Spannungsintensi-  
tät) beaufschlagt werden können. Wie in früheren Experimenten unter Siedewasserreaktorbe-  
dingungen hat sich auch bei Druckwasserreaktorbedingungen (IFA-657) gezeigt, dass reduzie-  
rende Bedingungen das Risswachstum nur bis zu mittleren Fluenzen verhindern oder vermin-  
dern. Von besonderem Wert sind Daten bei niedriger Spannungsintensität (Risswachstum ge-  
gen Null). Bei einer Spannungsintensität von 6 MPa  $m^{1/2}$  wurden in diesem Experiment Riss-  
wachstumsraten von 3 - 7  $\times 10^{-8}$  mm/s gemessen (1 - 2 mm/Jahr).

Diese und weitere Ergebnisse aus dem Programm des Halden Reactor Project sind im Einzelnen  
in den halbjährlichen Statusberichten /2, 3/ beschrieben.

## Nationale Zusammenarbeit

Human Reliability Assessment (HRA) ist von grossem Interesse für Experimente im HAMMLAB,  
wo Daten zur Untermauerung von HRA-Modellen erhalten werden. Beim Planen von HRA-  
Aktivitäten arbeitet das Haldenprojekt zusammen mit Experten aus den Mitgliedsländern. In der  
Schweiz ist insbesondere eine Zusammenarbeit mit Dr. Vinh Dang, PSI, etabliert. Das Haldenpro-  
jekt misst dem Informationsaustausch und dem Kontakt mit PSI und HSK auf diesem Forschungs-  
gebiet eine besondere Bedeutung zu. HSK und PSI spielen eine zentrale Rolle bei der Planung

des technischen Programms und der PSAM7-Konferenz und haben das Haldenprojekt durch Teilnahme im Programmkomitee unterstützt.

Auch im nuklearen Bereich ist die Zusammenarbeit des Halden Reactor Projects mit dem Paul Scherrer Institut zu erwähnen. Diese besteht insbesondere in der Betreuung und Auswertung des Inert Matrix Experiments sowie in unterstützenden Rechnungen zur Planung zukünftiger LOCA-Experimente. Die Vorausberechnungen geben Anhaltspunkte für die zu erwartenden Aufheizraten und Temperaturverhältnisse und wurden erstmals beim Testlauf mit frischem Brennstoff verwendet und verifiziert. Erwähnt werden muss auch die Zusammenarbeit mit Schweizer Kernkraftwerken bezüglich Bereitstellung und Transport von vorbestrahltem Brennstoff für das LOCA-Experiment. Dr. Ledergerber vom KKL hatte ausserdem 2003 den Vorsitz in der Halden Programme Group im Bereich Brennstoff- und Materialforschung.

## **Internationale Zusammenarbeit**

Das Halden Reactor Project ist selbst eine internationale Zusammenarbeit, an der 18 Nationen mit etwa 100 Organisationen teilnehmen. Dazu gehören Aufsichtsbehörden, Betreiber, Brennstoffhersteller und Forschungseinrichtungen.

## **Bewertung 2003 und Ausblick 2004**

Das in /1/ beschriebene Programm für 2003 ist weitgehend bearbeitet worden, jedoch mit der Einschränkung für die Brennstoff- und Materialforschung, dass der Halden-Reaktor wegen Reparaturarbeiten am Primärkreislauf nur die Hälfte der ursprünglich vorgesehenen Verfügbarkeit hatte. Einige der Bestrahlungsvorhaben sind entsprechend verzögert, während Vorarbeiten für neue Experimente im wesentlichen wie geplant fortgeführt wurden. Einzelheiten sind in den Statusrapporten für 2003 /2, 3/ beschrieben.

2003 ist das erste Jahre der neuen Programmperiode 2003 - 2005, dessen Rahmenplan in /4/ festgelegt ist, während die Einzelheiten für 2004 entsprechend in /5/ definiert sind. Zwischenergebnisse dieser Programmperiode werden in einer Konferenz (Enlarged Halden Programme Group Meeting) in Sandefjord/Norwegen im Mai 2004 vorgestellt werden.

## **Referenzen**

- [1] ***Halden Reactor Project Program Proposal 2003***, HP-1119
- [2] ***Status Report January – June 2003***, HP-1145
- [3] ***Status Report July – December 2003***, HP-1156 (wird 2004 herausgegeben)
- [4] ***Halden Reactor Project Program Proposal 2003 - 2005***
- [5] ***Halden Reactor Project Program Proposal 2004***, HP-1148





Datum: 12.03.2004

Von: B. Faust

## Begutachtung 2003 der Co-operative Research Activities US-NRC & HSK

### Einleitung

Die Schweiz beteiligt sich im Rahmen eines Abkommens mit der amerikanischen Sicherheitsbehörde an drei Teilprojekten für die Erforschung schwerer Unfälle. Sie möchte damit ihr Wissen erweitern und zur Minimierung von Unfallfolgen beitragen:

- COOPRA (Cooperative Probabilistic Risk Assessment Research): Zusammenarbeit und Austausch von Forschungsergebnissen auf dem Gebiet der Probabilistischen Sicherheitsanalyse.
- CSARP (Cooperative Severe Accident Research Programme): analytische und experimentelle Untersuchungen des Anlageverhaltens bei schweren Unfällen (Wechselwirkung zwischen Kernschmelze, Wasser und Reaktorbehälter sowie zwischen Baustrukturen); Verbesserung des Codes MELCOR zum Modellieren der Schmelze und der sie umgebenden Betonstruktur.
- Aging Research: Untersuchung zur Materialalterung sowie deren Auswirkung.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

#### COOPRA – Probabilistic Risk Assessment Research

Um PRA/PSA Informationen gegenseitig auszutauschen sowie die Unfallsimulations-Software kontinuierlich zu verbessern, werden vier COOPRA – Arbeitsgruppen eingesetzt: 1) Risiken bei Teillast und Stillstand (LPSD), 2) Feuerschäden an elektrischen Kabeln und Stromkreisen, 3) Risikoinformierte Entscheidungsfindung (RIDeM) und 4) Einfluss von organisatorischen Faktoren auf das Risiko. Im Übrigen arbeiten zwei Gruppen auf den Gebieten "Alterung von Kabeln" und "Unsicherheitsanalyse".

Im September 2003 haben sich die Beteiligten für eine Zusammenarbeit zwischen COOPRA und der WGRisk des CSNI (Working Group of Risk Assessment des Committee for the Safety of Nuclear Installations) entschlossen, um Doppelspurigkeiten zu vermeiden. Im Berichtsjahr dienten mehrere technische Meetings dazu, den „Report on Simplification Techniques Used in LPSD“ zu verfassen sowie den ersten Entwurf für eine Datenbank mit auslösenden Ereignissen vorzulegen.

#### CSARP – Severe Accident Research

Das Jahrestreffen vom 5. bis 7. Mai 2003 in Bethesda, Maryland, USA, diente dem Austausch technischer Informationen zur Erforschung schwerer Unfälle. Etwa 65 Teilnehmer diskutierten Sicherheitsfragen, die sowohl für Betreiber als auch für Behörden von Interesse sind. Die phänomenologische Forschung konzentrierte sich zum einen auf Unsicherheiten bei der Wechselwirkung zwischen Kühlwasser und Kernschmelze. Ziel ist insbesondere, mögliche Phänomene wirklichkeitsnäher abschätzen zu können. Zum anderen soll die Qualität von Computercodes weiter verbessert werden. Sowohl der von der NRC unterstützte Code MELCOR, als auch der von Europa getragene Code ASTEC

konnten im Berichtsjahr wesentlich verbessert werden. Dies zeigte sich am Meeting vom 8. bis 9. Mai 2003.

Die Teilnehmer betonten, dass sie nicht nur an der Forschung zu schweren Unfällen bestehender Kernanlagen interessiert sind, sondern die Option für den Bau neuer Kernanlagen offen halten wollen.

#### Aging Research

Im Berichtsjahr wurde die Rissbildung von Leichtwasserreaktoren durch Umwelteinwirkung untersucht und, wie sich Wärmebehandlung bei austenitischem, nicht rostendem Stahl (SSs) auf das Fortschreiten von Ermüdungsrissen auswirkt. Weiter wurden SSs bestrahlt und die Dehnungsrate gemessen, um Ursachen und Mechanismen der strahleninduzierten Risskorrosion zu erkennen. Fortschritte wurden erzielt bei den Messvorrichtungen, welche nun die Rissausbreitung noch genauer aufzeichnen können. Genaue Messmethoden sind erforderlich, da die bei den Experimenten eingesetzten Materialien nicht so empfindlich bzgl. Rissbildung reagieren. Aus den Versuchen kann abgeleitet werden, dass die Risse bei geschweisstem Stahl schneller wachsen als bei Nickellegierungen

Weiter untersuchte man den Verschleiss von sicherheitsrelevanten Komponenten in Druckbehältern unter Borsäureeinwirkung, um das Davis-Besse Ereignis bzgl. Korrosionsanfälligkeit zu betrachten. Aufgrund des Datenmangels verbesserte man mit Hilfe der Bayes – Formeln die Häufigkeitsverteilungen für auslösende Ereignisse schrittweise und konnte so die durch fortlaufende Inspektionen erworbenen Erfahrungen gezielt einbinden. Noch immer gibt es Unklarheiten bzgl. des elektrochemischen Potentials der Legierungen und der sie umgebenden wässrigen Lösung im Zusammenhang mit Davis-Besse. Dieser Frage wurde im Berichtsjahr mit Hilfe von Studien nachgegangen.

#### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Beteiligung an diesem US-NRC Programm ist für die HSK von grosser Bedeutung:

- COOPRA ermöglicht eine Weiterentwicklung von internationalen PSA-Standards.
- CSARP untersucht verschiedene Unfallszenarien auf analytischem und experimentellen Wege, wodurch Möglichkeiten aufgezeigt werden, wie Unfallfolgen vermindert werden können.
- Die HSK profitiert direkt von der Weiterentwicklung des MELCOR Codes und verfügt jederzeit über die neueste Version dieses Codes.
- Die Resultate des Teilprojektes "Aging Research" kann im Rahmen der Verbesserung von Sicherheitsvorschriften für schweizerische Kernanlagen genutzt werden.
- Im Rahmen der Zusammenarbeitsvereinbarung zwischen der HSK und der US-NRC werden auch weitere wichtige Informationen ausgetauscht, wie zum Beispiel der Umgang mit dem Zusatzrisiko "Flugzeugabsturz".

#### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die Zusammenarbeit in allen Unterprogrammen wird weitergeführt. Ein internationaler Workshop zum Thema "The Effects of Deregulation on Safety" ist im Jahr 2004 vorgesehen.

# CO-OPERATIVE RESEARCH ACTIVITIES

## US-NRC & HSK

Autor und Koautoren	Andrew J. Szukiewicz, Sr. International Research Programme Coordinator
beauftragte Institution	US-NRC
Adresse	US Nuclear Regulatory Commission, Washington D.C. 20555-0001, USA
Telefon, E-mail, Internetadresse	ajs2@nrc.gov
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	
Dauer des Projekts (von – bis)	

### SUMMARY

The United States Nuclear Regulatory Commission (US-NRC) and the Swiss Federal Office of Energy have concluded an agreement under which they cooperate in the research areas of severe accidents, through the Cooperative Severe Accident Research Program (CSARP), probabilistic risk assessment, through its Cooperative Risk Assessment Program (COOPRA), deregulation and aging research programs. In 2003, several technical meetings were held. This report summarizes the main achievements:

Probabilistic Risk Assessment Research (COOPRA): Currently under COOPRA are the following four working groups: 1) Low Power and Shutdown Risk, 2) Fire-Induced Damage to Electrical Cables and Circuits, 3) Risk-Informed Decision Making RIDeM, and 4) Organizational Influences on Risk.

Severe Accident Research (CSARP): The annual CSARP Technical Review covered two major themes: progress in phenomenological research and experiments, and progress in code development, assessment, and applications. Progress in severe accident code development, mainly MELCOR, and assessment was reported at the meetings.

Deregulation Research: A workshop on the effects of Deregulation on safety is planned in conjunction with HSK.

Aging Research: The experimental effort in 2003 was focused on the effect of heat treatment on fatigue crack initiation in austenitic stainless steels (SSs). Slow strain rate tests were completed in 289°C water on SSs irradiated up to ~3 dpa. In cooperation with the International Group on Cooperative Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking Research (IASCC), SS specimens are being irradiated under PWR-like condition in BOR-60 reactor located in Research Institute of Atomic Reactors (RIAR), Dimitrovgrad, Russia. The test facility received further upgrade in 2003 to improve the sensitivity of the crack extension monitoring instrumentation. This is necessary because the test program objectives have begun to include less susceptible materials, for which the instrumentation must be comparably more sensitive. This is a new program, initiated late in 2002 to address issues raised by the Davis-Besse corrosion event, together with a long history of similar events of lesser proportions throughout the world. The corrosion at Beznau in 1970 is an early, representative, but still modest example of boric acid corrosion of a pressure vessel head. There are four experimental tasks in this program, and results will be reported to HSK as they become available during 2003 and 2004.

## **Aims of the project, performed activities and obtained results**

### **COOPERATIVE PROBABILISTIC RISK ASSESSMENT (COOPRA) RESEARCH**

During 2003, COOPRA continued as a forum for collaboration between international organizations to improve the sharing of PRA/PSA information and to facilitate the efficient development and use of PRA/PSA tools. COOPRA included the following four working groups:

- 1) Low Power and Shutdown Risk (LPSD),
- 2) Fire-Induced Damage to Electrical Cables and Circuits (FIDECC),
- 3) Risk-Informed Decision Making (RiDeM), and
- 4) Organizational Influences on Risk.

Under COOPRA there are two special interest groups: 1) Cable Aging, and 2) Uncertainty Analysis. The COOPRA Steering Committee meeting was held in Paris, France, in September.

The working group on Organizational Influences on Risk has remained inactive for more than two years. Although there is a future potential interest in this group, currently none of the member countries are actively contributing to this group. The Committee voted and agreed to eliminate the group. The Committee also decided to re-visit this issue in future meetings, and if there is renewed interest in this area to start the working group again.

Several technical meetings were held in 2003 and reports posted in the COOPRA web site making them available to the COOPRA members. One such meeting was held in the United Kingdom in June for the RiDeM working group. Several reports were posted on the COOPRA web site for the RiDeM working group which address research needs, database of risk-informed decisions, and sources of variability and uncertainty in nuclear reactor PSAs. Another meeting took place in Paris, France, in September, for the working group on LPSD. A list of studies, the working group charter and history, and the topical report entitled "Report on Simplification Techniques Used in LPSD PSA" were posted on the web site. One meeting was held in September 2003, in the USA for the FIDECC working group. The US posted on the COOPRA web site a draft report documenting results related to the goals of this working group. At the September meeting, the group primarily discussed the US report and the schedule for reports from other member countries.

### **SEVERE ACCIDENT RESEARCH (CSARP)**

The annual Cooperative Severe Accident Research Program (CSARP) Technical Review meeting was conducted on May 5-7, 2003, at Bethesda, Maryland. This international meeting serves as a forum for exchange of technical information on severe accident research with a view to addressing regulatory and safety issues. The meeting was attended by 65 participants from 14 CSARP Partner countries and from the national laboratories, universities, and the NRC. The technical sessions covered two major themes: progress in phenomenological research and experiments, and progress in code development, assessment, and applications. Phenomenological research focused on remaining uncertainties in the areas of melt coolability and melt structure coolant interactions with the objective of resolving these issues from a risk perspective. Experimental work, sponsored by the Organization for Economic Cooperation and Development (OECD) Committee for the Safety of Nuclear Installations (CSNI), the European Union (EU) member countries under multilateral cooperative agreements, and by the NRC were presented at the meeting.

Presentations of code related activities emphasized the progress made in NRC's severe accident code (MELCOR) consolidation and modernization effort as well as the European effort to develop the integral code, ASTEC. Code related presentations also included a great deal of assessment work and applications of severe accident codes to address and resolve safety issues. The CSARP meeting this year was followed by a MELCOR Code Assessment Program (MCAP) Meeting from May 8-9, 2003. The MCAP meeting presented an opportunity to discuss a wide range of MELCOR applications for reactor safety analysis.

## **DEREGULATION RESEARCH**

Dr. Chakraborty (HSK) indicated that he is willing to sponsor a workshop in Europe on "The Effects of Deregulation on Safety" in order to solicit input and views from the European community. Negotiations are currently ongoing.

## **AGING RESEARCH**

### **Environmentally Assisted Cracking in Light Water Reactors (2003 status)**

#### Task 1: Environmental Effects on Fatigue Crack Initiation.

The experimental effort in 2003 was focused on the effect of heat treatment on fatigue crack initiation in austenitic stainless steels (SSs). The results indicate that heat treatment has little or no effect on the fatigue life of Type 304 SS in air and low-DO PWR environments. In high-DO BWR environment, fatigue life is lower for the sensitized SSs; the decrease in life appears to increase as degree of sensitization is increased. In air, irrespective of the degree of sensitization, the fracture mode for crack initiation and propagation was transgranular (TG). With increasing degree of sensitization, cleavage-like or stepped TG fracture, and occasionally ridge structures on the smooth surfaces were observed. In the BWR environment, the initial crack appeared intergranular (IG) and transformed within 200  $\mu\text{m}$  into a TG mode with cleavage-like features. By contrast in PWR environments, irrespective of the degree of sensitization, crack initiation and propagation was TG with highly angular, cleavage-like fracture facets exhibiting well-defined "river" patterns.

#### Task 2: Evaluation of the Causes and Mechanisms of IASCC in BWRs.

Slow strain rate tests were completed in 289°C water on SSs irradiated up to ~3 dpa. The bulk S-content provide the best correlation with the susceptibility to IASCC. Types 304 and 316 SS containing S =0.002 wt.% were resistant, whereas at S concentrations >0.003 wt.%, susceptibility increased drastically. However, S content =0.002 wt.% does not necessarily render low-C or high-purity SSs resistant to IASCC, indicating beneficial effect of C. These data suggest that the deleterious effect of sulfur is more pronounced in the low-C types 304L or 316L than in the high-C counterparts. Crack growth rate testing of irradiated SSs continued during 2003. Four tests were completed in BWR environments at ~289°C on 304 SS irradiated to 0.3, 0.9, and 2.0  $\times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> and 316 SS irradiated to 2.0  $\times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>. Stainless steel irradiated to 0.3  $\times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> showed very little enhancement, and those irradiated to higher fluence showed significant enhancement of CGRs in NWC BWR environment. The SCC growth rates were a factor of ~5 higher than the disposition curve proposed in NUREG-0313 for sensitized SSs. In low-DO BWR environments, the CGRs of irradiated SSs decreased by an order of magnitude. The beneficial effect of decreased DO was not observed for 304 SS irradiated to 2  $\times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>; it is possible that this different behavior is associated with the loss of constraint in the specimen due to the high K. Crack growth tests are in progress on SS weld heat affected zone (HAZ) specimens irradiated to 5.0  $\times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>.

#### Task 3: Evaluation of Causes and Mechanisms of IASCC of Austenitic SS in PWRs.

In cooperation with the International Group on Cooperative Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking Research (IASCC), SS specimens are being irradiated under PWR-like condition in BOR-60 reactor located in Research Institute of Atomic Reactors (RIAR), Dimitrovgrad, Russia. Irradiation to ~5 and ~10 dpa has been completed. Experimental effort in this task during FY 2003 was focused on SSRT and bend-fracture tests in inert atmosphere and in low-ECP water on (a) components from the decommissioned EBR-II reactor, (b) steels irradiated in the Halden Reactor, and (c) BWR neutron absorber tubes. Similar to the effort to evaluate the compositional characteristics of SS heats resistant to IASCC under BWR-like conditions, steels reported to be resistant to IASCC under PWR conditions were analyzed carefully. A two-dimensional map was constructed as function of bulk S and C concentration that shows the range in which the SSs were found to be resistant to IASCC.

#### Task 4: Cracking of Nickel Alloys and Weldment

The test facility received further upgrade in 2003 to improve the sensitivity of the crack extension monitoring instrumentation. This is necessary because the test program objectives have begun to include less susceptible materials, for which the instrumentation must be comparably more sensi-

tive. Crack growth rate tests in FY 2003 were initiated, and then terminated, on the ICG-EAC round robin Alloy 600 specimen and a laboratory-prepared Alloy 182 weld metal specimen in simulated PWR environment at 320°C. For the round robin specimen, crack advance was much greater near the edge of the specimen than in the center. The degree of cold work may not be uniform across the thickness of the specimen. The experimental growth rates for the weld-metal specimen were lower than those typically observed for Alloy 182, the rates were comparable to those for stress relieved welds. A detailed metallographic examination, including orientation-imaging microscopy, of the weld was performed to characterize the microstructure of the weld.

#### Degradation of Reactor Pressure Vessel Boundary Components in Concentrated Boric Acid Solutions:

Task 1: Crack Growth Rates of Alloys 600 and 182 Removed from Davis-Besse Nozzles and J-weld

Crack growth tests are being conducted in simulated PWR coolant environment at 316°C (600°F) on CRDM and J-groove weld alloys removed from the head of the Davis-Besse plant. The tests are performed in accordance with accepted guidelines that qualify the results for inclusion in the industry and NRC-accepted databases for each material. The test on Alloy 600 from the CRDM nozzle has been completed; the experimental crack growth rates correspond to the 83rd percentile of the MRP distribution for nozzle material, i.e., a susceptible heat. Characterization of tensile properties and microstructure of the nozzle and J-groove weld material has also been completed.

Task 2: Development of an Integrated Crack Growth Rate and Inspection Frequency Determination Model

The industry and the USNRC have developed probabilistic models to describe cracking and failure of CRDM nozzles. The largest uncertainties in the models are associated with the initiation parameters and the correlation of the initiation parameters with the crack growth rates. In these models, the initiation of leaks and cracks are determined from laboratory and field experience with steam generator tubing and empirical fitting of inspection and failure data for CRDM nozzles.

Task 3: Corrosion of Reactor Steels in Concentrated Boric Acid Solutions

Test facilities were established to conduct corrosion/wastage tests in (i) high-temperature, high-pressure aqueous environment with a range of boric acid solution concentrations; (ii) high-temperature (235–320°C) molten salt solutions at atmospheric pressure; and (iii) low-temperature (~95°C) saturated boric acid solution both deaerated and aerated. These environments correspond, respectively, to the following postulated situations: (a) low leakage through nozzle crack and nozzle/head crevice plugged, (b) low leakage through nozzle crack and nozzle/head crevice open, and (c) significant cooling due to high leakage through nozzle crack and nozzle/head crevice open. Corrosion tests on A533B pressure vessel steel, Alloy 600 nozzle material, and 308 SS cladding, have been completed in low-temperature saturated boric acid solutions and high-temperature molten salt solutions. The wastage rates for A533B steel show good agreement with the data obtained earlier in EPRI studies in aerated and deaerated boric acid solutions.

Task 4: Measurement of Electrochemical Potential (Corrosion Potential) of Alloy 600, Alloy 182 and A533B in Concentrated Boric Acid Solutions.

The Davis Besse root cause report provides a scenario that attempts to explain the progression, but the differences between the Davis Besse case and the other CRDM cracking instances are still unclear. The report is incomplete in many regards, e.g., the electrochemical potentials (ECPs) of the alloys and aqueous solutions involved are not known. The purpose of this task was to measure the ECP and conduct potentiodynamic anodic polarization studies on reactor pressure vessel head and nozzle materials under environmental conditions in the nozzle/vessel head crevice and use the results to define the specific environmental conditions for the long-term corrosion/wastage tests described in Task 3.

## **National and International Collaboration**

The United States Nuclear Regulatory Commission (US-NRC) and the Swiss Federal Office of Energy have concluded an agreement under which they cooperate in the research areas of severe accidents, through the Cooperative Severe Accident Research Program (CSARP), probabilistic risk assessment, through its Cooperative Risk Assessment Program (COOPRA), deregulation and aging re-search programs.

## **Evaluation 2003 and outlook 2004**

In 2003, several experimental programs have been performed successfully and upgrades were made to the COOPRA web site. The Committee voted and agreed to increase coordination and cooperation between COOPRA and CSNI's Working Group on Risk Assessment (WGRisk). This will include combined COOPRA and WGRisk group meetings and combined reports. The decision on coordination of activities between COOPRA and WGRisk was also accepted by the participants of the WGRisk annual meeting which took place on September 2003, in Paris France.

The group "Low Power and Shutdown Risk" (LPSD) performed several studies and completed the first draft of the initiating event database.

Experiments on air oxidation of fuel cladding, the new NRC sponsored experimental work, attracted a great deal of attention. The CSARP participants expressed their views that severe accident research in the future needs to address advanced reactor issues as well. The participants also expressed a strong desire to continue the annual meeting in its current form, but suggested that the meeting contents be expanded to include consequence analysis.

Also, progress has been made with respect to environmental assisted cracking in light water reactors and to degradation of reactor pressure vessel boundary components in concentrated boric acid solutions. Because of the limited amount of failure data available, the use of Bays theorem has been investigated to update distributions for the initiation parameters to reflect inspection experience and to determine distributions appropriate to different head fabricators and material suppliers. The number of large cracks predicted by the model is consistent with field experience.

The program, initiated late in 2002, to address issues raised by the Davis-Besse corrosion event, together with a long history of similar events of lesser proportions throughout the world is ongoing. The corrosion at Beznau in 1970 is an early, representative, but still modest example of boric acid corrosion of a pressure vessel head. There are four experimental tasks in this program, and results will be reported to HSK as they become available during 2003 and 2004.



Datum: 26. Januar 2004

Von: E. Frank

## Begutachtung 2003 für das Projekt Mont Terri

### Einleitung

Im Felslabor Mont Terri wird ein internationales Forschungsprojekt zur Erfassung geologischer, hydrogeologischer und felsmechanischer Eigenschaften des Opalinuston durchgeführt. Es werden Daten gewonnen, die zur Beurteilung der Sicherheit und zur Abklärung der bautechnischen Machbarkeit eines geologischen Tiefenlagers notwendig sind. Das Projekt umfasst heute 12 Partner (ANDRA, BGR, BWG, CRIEPI, ENRESA, GRS, HSK, IRSN, JNC, NAGRA, OBAYASCHI, SCK) aus 6 Ländern (Schweiz, Frankreich, Deutschland, Spanien, Belgien und Japan). Die HSK ist im Sommer 2003 dem Mont Terri Projekt beigetreten weil sie die von ihr sowie ihren Experten entwickelten Modelle und Rechenwerkzeuge zur Überprüfung des Entsorgungsnachweises Opalinuston an konkreten Datensätzen des Felslabors validieren will. Weiter sind Informationen über den Stand der internationalen Forschungsarbeiten in Tongesteinen für die HSK unerlässlich, das Mont Terri Projekt bietet dazu eine einzigartige, wichtige Plattform.

Für die Phase 9 des Mont Terri Forschungsprogrammes (Juli 2003 – Juni 2004) hat die Ingenieurgeologie der ETH-Zürich im Auftrag der HSK das Experiment EZ-B „Mechanical Heterogeneities and Fracture Generation in the EDZ“ vorbereitet und begonnen. Dabei soll die die Kluffbildung in der Auflockerungszone (sog. EDZ=Excavation Damaged Zone), die beim Ausbruch des Stollens infolge der Spannungsumlagerungen im Gebirge entsteht, untersucht, charakterisiert und modelliert werden. Die Entstehung und Fortpflanzung diskreter Klüfte in der EDZ soll direkt beobachtet und numerisch simuliert werden. Die Grösse der Auflockerungszone eines Stollens hängt nicht nur von der Beschaffenheit des Gesteins ab, die in-situ Spannungsverhältnisse und die Änderungen von Materialeigenschaften aufgrund der Exkavationsvorgänge spielt ebenfalls eine wesentliche Rolle. Stoffliche bzw. mechanische Heterogenitäten beeinflussen dabei die Spannungsverteilung im Gestein und können als Stresskonzentratoren für die Nukleation und Propagation neuer Klüfte wirken. Im Experiment will man deshalb zuerst eine detaillierte geologische und strukturelle Analyse an ungestörtem Opalinuston vorzunehmen, um sich so ein Bild der Heterogenität und Anisotropie des Gesteins zu verschaffen. Daneben werden mittels geophysikalischer Messungen und Laboruntersuchungen die für die Modellierung erforderlichen petrophysikalischen und felsmechanischen Kennwerte ermittelt. In einem zweiten Schritt wird eine Simulation der Kluffbildung in der EDZ mit dem Rechencode ELFEN durchgeführt und die Ergebnisse mit den Befunden im Felslabor verglichen.



### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

In den ersten 6 Monaten des Projektes wurden die bisher vorliegenden Daten zur geologischen Heterogenität, zur Geometrie der Trennflächen in der EDZ, zu den felsmechanischen Festigkeits- und Verformungseigenschaften sowie zu den petrophysikalischen Kennwerten des Opalinustons zusammengetragen. Diese Arbeiten sind nun abgeschlossen und werden in einem technischen Bericht (TN 2004-40) publiziert. Es hat sich gezeigt, dass nun eine qualitativ hochstehende Kartierung und Dokumentation der tektonischen Strukturen in den Tunnelparametern und Bohrkernen vorliegt.

Bezüglich der numerischen Simulation der Kluffbildung wurde die Anwendbarkeit des Rechencodes ELFEN (ROCKFIELD SOFTWARE LTD., SUSSEX) geprüft und erste Testrechnungen durchgeführt. Diese Arbeit ist im Gang und hat sowohl positive wie negative Erkenntnisse gebracht. Die Gründe liegen bei numerischen Problemen sowie bei den Einschränkungen in der felsmechanischen Konzeptualisierung von ELFEN. Diese müssen in weiteren Testfällen untersucht werden.

Insgesamt wurden die für 2003 gesetzten Projektziele erreicht.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Das Forschungsprojekt liefert einen wichtigen Beitrag zur Beurteilung der Auflockerungszonen von Lagerstollen (EDZ) auf die Sicherheit eines geologischen Tiefenlagers. Es konnte termingerecht gestartet werden, so dass erste Ergebnisse in die Beurteilung des Entsorgungsnachweises Opalinuston einfließen können.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die Untersuchungen zur Entstehung der EDZ stellen einen ersten Schritt eines langfristigen Forschungsvorhabens dar, in dem die gesamte zeitliche Entwicklung des Endlager-Nahfeldes und der EDZ und ihrer transport-relevanten Eigenschaften untersucht werden soll. Für die Analyse des, für den Radionuklid-Transport wichtigen Wasserflusses, in einer aus diskreten Trennflächen aufgebauten EDZ, müssen darum langfristig weitere Simulationen bereitgestellt werden.



Datum: 09.03.2004

Von: C. Maeder

## **Begutachtung 2003 für das Projekt „CABRI-Wasserloop“**

### **Einleitung**

Im CABRI-Waterloop-Projekt der OECD/NEA und des „Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN)“ werden am Forschungsreaktor CABRI in Cadarache, Frankreich Versuche zum Verhalten von Brennstäben bei schnellen Reaktivitätsstörfällen in Kernreaktoren durchgeführt. Zu diesen Reaktivitätsstörfällen (Reactivity Initiated Accidents, RIA) gehören der Steuerstabauswurf im Druckwasserreaktor und der Steuerstabfall im Siedewasserreaktor, die zu den wichtigsten Auslegungsstörfällen gerechnet werden. Zur Zeit wird der bisher mit Natrium gekühlte Testloop des CABRI-Reaktors auf Wasserkühlung umgeändert, so dass die Versuchsanordnung den in den Leichtwasserreaktoren vorhandenen Bedingungen besser entsprechen wird.

Im Rahmen des CABRI International Program (CIP) werden 12 Experimente an hochabgebrannten Brennstäben mit fortschrittlichen Brennstoff- und Hüllrohrmaterialien durchgeführt. Am CIP sind bisher Deutschland, England, Finnland, Frankreich, Südkorea, Schweden, Schweiz, Slowakei, Spanien und die USA beteiligt. Zudem sind die laufenden Verhandlungen für den Beitritt Japans zum CIP auf gutem Wege. Zur Beratung des IRSN und zur Festlegung der Versuchsrandbedingungen wurden eine „Technical Advisory Group“ und ein „Steering Committee“ eingesetzt, in welchen die Schweiz durch die HSK vertreten ist. Die schweizerischen Kernkraftwerke haben Testbrennstäbe angeboten, welche je nach Eignung bei den RIA-Tests verwendet werden könnten.

### **Welche Projektziele wurden im Jahre 2003 erreicht?**

Im Jahre 2003 wurden folgende Projektziele erreicht:

- Mit dem Abbau des Natriumloops wurde begonnen und die Planung des Wasserloops wurde weitergeführt. Das IRSN hat der französischen Sicherheitsbehörde den Sicherheitsbericht für den CABRI-Reaktor mit Wasserloop eingereicht. Die aktuelle Planung sieht die Durchführung des ersten Experiments im Wasserloop für Ende 2006 und den Abschluss des CIP-Programms für Ende 2009 vor.
- Für die Instrumentierung des Wasserloops wurden die früher begonnenen Arbeiten zur Planung, Ausführung und Durchführung von Tests fortgesetzt.
- An den Brennstäben der beiden RIA-Tests der Serie CIP-0, die im November 2002 im natriumgekühlten CABRI-Testloop durchgeführt worden waren, wurden Nachbestrahlungsuntersuchungen vorgenommen. Sie zeigten, dass die Hüllrohre beider Brennstäbe während der Tests intakt blieben.
- Für den Qualifikationsversuch CIP-Q des Wasserloops wurden die Testziele (einwandfreie mechanische und messtechnische Funktion des Wasserloops und Auftreten von Filmsieden) festgelegt und ein geeigneter Testbrennstab ausgewählt.

- Für die weiteren CIP-Tests wurden die Testziele vertieft diskutiert. Wichtige Aspekte sind die Verbindung zu den früheren Experimenten im Natriumloop, das Auftreten von Hüllrohrdefekten mit Brennstoff-Kühlmittelwechselwirkung, die Geschwindigkeit der Leistungsexkursion, die Oxidation des Hüllrohrs und die Verwendung von Uran-Plutonium-Mischoxid-Brennstoff.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Für den Wasserloop ist der CABRI-Reaktor weltweit neben Forschungsreaktoren in Japan (NSRR-Reaktor) und Russland (IGR, BGR) die einzige Anlage, an der das Brennstoffverhalten bei schnellen Reaktivitätsstörfällen in Leichtwasserreaktoren realistisch simuliert werden kann. Die Ergebnisse werden es erlauben die Störfallphänomene genauer zu modellieren und die festgelegten Nachweisziele für Hochabbrandbrennstoff und fortgeschrittene Hüllrohrmaterialien zu verifizieren und nötigenfalls zu verbessern. Das Projekt findet international grosse Beachtung. Es wird durch das IRSN effizient durchgeführt und durch die beteiligten Länder intensiv begleitet.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Die bis zum Beginn der Versuche im Wasserloop zur Verfügung stehende Zeit von ca. drei Jahren muss genutzt werden, um die Versuchsrandbedingungen und die zu verwendenden Testbrennstäbe im Einzelnen festzulegen. Die Eigenschaften der vorgesehenen Testbrennstäbe sind zu untersuchen, die benötigten Versuchsdaten zusammenzustellen und der erwartete Versuchsablauf im Voraus zu berechnen. Von besonderem Interesse wären Versuche mit Brennstäben, die sowohl im CABRI- als auch im NSRR-Reaktor in Japan durchgeführt werden. Die vorgesehene Beteiligung von Japan am CABRI-Waterloop-Projekt ist sehr zu begrüßen.

### **Referenzen**

- /1/ IRSN-Report 2003/47: CABRI Waterloop Programme: Status Report Nr. 7, 27.05.2003
- /2/ IRSN-Report 2004/56: CABRI Waterloop Programme: Status Report Nr. 7, 29.01.2004
- /3/ Summary Record of the 9<sup>th</sup> Meeting of the Technical Advisory Group of the OECD/NEA –IRSN CABRI Waterloop Project, Madrid, 20 – 21 November 2003



Datum: 10.03.2004

Von: B. Faust

## Begutachtung 2003 für das Projekt OECD-MSWI

### Einleitung

Das Projekt „Melt Structure and Water Interaction“ (OECD-MSWI) hat im Januar 2003 begonnen und ist befristet bis zum Dezember 2005. Das am „Royal Institute of Technology“ der KTH Stockholm durchgeführte Projekt wird getragen von der HSK, der schwedischen Behörde SKI sowie von den schwedischen und finnischen Betreibern der Kernanlagen.

Untersucht werden die Kühlbarkeit von Kernschmelze innerhalb und ausserhalb des Reaktordruckbehälters, Parameter bei Dampfexplosionen und ihr Einfluss auf die Containmentintegrität von Siedewasserreaktoren, Versagensmodi von Reaktordruckbehältern bei Siede- und Druckwasserreaktoren, sowie Modellierungsgrenzen der Computercodes MAAP und MELCOR.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

Beim Workshop vom 28. November 2003 wurde der HSK von Professor Sehgal präsentiert, zu welchen Themenbereichen die KTH Forschungsleistungen anbieten kann. Es handelt sich dabei um Schwere Unfälle, Thermohydraulik und Alterungsmanagement bei Kernanlagen. Folgende Themen werden im Rahmen des Projektes vertieft untersucht:

#### Kühlbarkeit von Kernschmelze oder Kernschmelztrümmern innerhalb des Reaktordruckbehälters

Mit Hilfe der Versuchseinrichtungen COMECO (COrium MElt COolability) und POMEKO (POrous MEdia COolability) wurde der untere Bereich des Siedewasser-Reaktor-Druck-Behälters abgebildet. Der Massstab wurde an den Abmessungen eines Steuerstabs und dem ihn umgebenden Schmelzvolumen ausgerichtet. An mehreren Positionen angebrachte Thermoelemente zeichnen den Wärmeübergang abhängig von der Zeit auf. Mit Hilfe des COMECO Versuches wurde die Kühlung durch Flutung der unteren Kalotte mit Wasser untersucht. Die Kühlwasserableitung erfolgte durch ein Fallrohr „downcomer“, wobei der Zweiphasenkreislauf auf natürliche Weise einen höheren Massentransport am RDB-Boden gewährleisten konnte. Gleichzeitig wird der Fragmentierungsprozess mit Beginn des Absinkens der ersten Kernschmelzteilchen in den Wasserpool, deren thermisches und hydrodynamisches Verhalten während des Quenchings und mögliche Wasserstoff-Verpuffungen untersucht. Der POMEKO Versuch illustrierte den Wärmeübergang über mehrere Steuerstab-Führungsrohre abhängig von der Schichtungsart der Schmelze im unteren Bereich der Kalotte.

#### Kühlbarkeit von Kernschmelze bzw. zerstörten Kernschmelzfragmenten ausserhalb des RDB's

Bei gleicher Versuchseinrichtung wie oben wurde hier zusätzlich Luft über den Boden des Reaktordruckbehälters eingeblasen, um die realen Verhältnisse bestmöglich zu simulieren.

### Containmentintegrität von Siedewasserreaktoren bei einer Dampfexplosion

Da Versuche für Dampfexplosionen im Originalmassstab nicht praktikabel sind, werden die wichtigsten Bruchmechanismen des Containments mit Hilfe von MISTEE Einzeltests (Micro Interaction Stream Explosion Experiment) untersucht. Im transienten Fragmentierungsprozess wird die Explosionsintensität durch das Volumen der metallischen „Schmelze-Droplets“ abhängig von den thermischen Rahmenbedingungen bestimmt. Ein einzelnes „Droplet“ verhält sich anders als mehrere, wobei für das Gesamtsystem zusätzlich noch die Materialzusammensetzung (Reinmetall, Metallmonoxid, Ein- und Zweikomponentenmischung von Metalloxiden) wichtig ist. Zum ersten Mal konnte dieser Prozess quantifiziert und die zugehörigen energetischen (Druck)verhältnisse veranschaulicht werden, wobei unter anderem die Parameter „trigger strength“ und „melt droplet superheat“ variiert wurden.

### Versagensmodi im Reaktorbehälter aufgrund von thermischer und mechanischer Belastung

Um die Aussagekraft der Level 2 – PSA für Siede- und Druckwasserreaktoren zu verbessern, sollen wahrscheinliche Versagensmodi zusammen mit ihren Auslösemechanismen studiert werden. Wird die in den ersten Sekunden nach dem RDB-Versagen die freigewordene Energie mittels Schmelztemperatur berechnet, ergibt sich ein niedrigerer Wert als dies über die Verdampfungsrate der Fall wäre. Bei den FOREVER Experimenten wird Kühlwasser von oben die Schmelze gebracht und dann die Wärmeübergangparameter mit dem RELAP Code berechnet. Im Berichtsjahr wurde nachgewiesen, dass der Wärmeübergang von der Oberfläche aus im Laufe der Zeit durch fortschreitende Krustenbildung abnimmt. Somit gewährleistet Quenching von oben nicht in jedem Fall die gewünschte Kühlung.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Das Projekt MSWI soll die Beherrschung von schweren Unfällen verbessern. So erhält die HSK Informationen über Kühlmöglichkeiten von Kernschmelzfragmenten im Falle eines schweren Unfalls, über Möglichkeiten des Eindringens von Wasser in Risse und über wahrscheinliche Versagensmodi der Sicherheitshülle. Wie Parameter wirklichkeitsnah bestimmt sowie Unsicherheiten zuverlässig abgeschätzt und bewertet werden können, wird im Rahmen des Projektes ebenfalls studiert.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das internationale Programm wird in allen Teilbereichen fortgesetzt. Dies bedingt einen regen Austausch mit den Projektpartnern. Nicht nur deshalb, sondern auch um ihren gesetzlich geforderten Aufgaben der Verfolgung des Standes von Wissenschaft und Technik nachkommen zu können, sollte die HSK an den Steering Committee Meetings in Zukunft grundsätzlich teilnehmen.

Jahresbericht 2003, 16. March 2004

# MSWI Project

## (Melt-Structure-Water Interactions During Postulated Severe Accidents in LWRs)

Autor und Koautoren	B.R. Sehgal, H.S. Park, A. Giri, A. Karbojian, A. Jasiulevicius, R.C. Hanson, U. Chikkanagoudar, D. Shiferaw, and A. Stepanyan
beauftragte Institution	Division of Nuclear Power Safety, Department of Energy Technology Royal Institute of Technology
Adresse	Drottning Kristinas väg 33A 100 44 Stockholm, Sweden
Telefon, E-mail, Internetadresse	+46-8-790-9196, bsehgal@energy.kth.se
BFE Projekt-/Vertrag-Nummer	?
Dauer des Projekts (von – bis)	?

### SUMMARY

This is the annual report for the work performed in year 2003 in the research project "Melt-Structure-Water Interactions (MSWI) During Severe Accidents in LWRs", under the auspices of the APRI Project, jointly funded by HSK, SKI, and the Swedish and Finnish power companies. The emphasis of the work was placed on phenomena and parameters, which govern the droplet fragmentation in steam explosions, in-vessel and ex-vessel melt/debris coolability, melt pool convection, and the thermal and mechanical loadings of a pressure vessel during melt-vessel interaction.

Most research projects in 2002, such as the COMECO, POMEKO and MISTEE programs, were continued. An analysis of the FOREVER experiments using the RELAP code to investigate the melt coolability, bubble dynamics and bubble stability to investigate the dynamic behavior of vapor bubble during steam explosions and associated melt fragmentation, quenching boiling experiment to investigate the thermal behavior of single melt droplet were newly initiated. The SIMECO experiment to investigate the three-layer melt pool convection was restarted. The experimental facilities for these projects were fully functional during year 2003. Many of the investigations performed during the course of the MSWI project have produced papers, which have been published in the proceedings of technical meetings and Journals.

## Aims of the project

This is the annual report for the work performed in year 2003 in the research project "Melt-Structure-Water Interactions (MSWI) During Severe Accidents in LWRs, under the auspices of the APRI Project, jointly funded by HSK, SKI, and the Swedish and Finnish power companies. The emphasis of the work was placed on phenomena and parameters, which govern the droplet fragmentation in steam explosions, in-vessel and ex-vessel melt/debris coolability, melt pool convection, and the thermal and mechanical loadings of a pressure vessel during melt-vessel interaction.

Most research projects in 2002, such as the COMECO, POMECO and MISTEE programs, were continued. An analysis of the FOREVER experiments using the RELAP code to investigate the melt coolability, bubble dynamics and bubble stability to investigate the dynamic behavior of vapor bubble during steam explosions and associated melt fragmentation, quenching boiling experiment to investigate the thermal behavior of single melt droplet were newly initiated. The SIMECO experiment to investigate the three-layer melt pool convection was restarted. The experimental facilities for these projects were fully functional during year 2003. Many of the investigations performed during the course of the MSWI project have produced papers, which have been published in the proceedings of technical meetings and Journals.

## Performed activities and obtained results

This report presents descriptions of the major results obtained in the research program MSWI at NPS/RIT during 2003. The primary objectives of the MSWI Project in year 2003 were to study:

- The in-vessel melt coolability process when the lower head with full of melt is flooded with water.
- The enhancement of in-vessel debris and melt coolability with heat removal through control rod guide tubes.
- The ex-vessel melt pool coolability process and the enhancement of coolability through water addition in downcomers.
- The in-vessel melt pool convection when the melt pool in the lower head forms multi-layer configuration.
- The droplet triggering and fragmentation process that occurs when a melt droplet is discharged into a water pool.
- The thermal and hydrodynamic behavior of a melt droplet during the quenching process.

Associated objectives were to (1) establish scaling relationships so that the data obtained in the experiments could be extended to prototypical accident geometries and conditions, (2) develop phenomenological or computational models for the processes under investigation and (3) validate the existing and newly-developed models against data obtained at RIT and at other laboratories.

The experimental results from the COMECO, POMECO, SIMECO and MISTEE experiments as well as analytical results on droplet deformation, bubble dynamics during the steam explosion, and melt coolability during the FOREVER experiments, using the RELAP code, are obtained. We believe that significant technical advances have been achieved during the course of these studies at RIT/NPS during 2003. It was found that:

**(1) MISTEE Program:**

- A series of experiments on single drop steam explosions was performed to investigate the fine fragmentation process of a metallic melt drop in various thermal conditions. For the first time, transient fine fragmentation process of a melt drop during steam explosion was quantified.
- Visual observation with high-speed photography and X-ray radiographs indicated that the small-scale stratified explosion initiated at the side edge of a droplet propagated along the melt surface for highly subcooled water. The fragment jets were ejected from the wavy boundary of the interaction zone. These jets can be an evidence of a micro-jet formation also observed in the cavitation process.
- The secondary explosions of larger melt fragments separated from the wavy surface of the interaction zone. This secondary explosion was not observed in tests with water temperature less than 40°C.
- A shell of fragmented melt particle near the vapor bubble boundary was observed during the explosions. The maximum expansion diameter of fragmented particles and vapor bubble reached 3~3.5 times the initial diameters.
- Single drop vapor explosions in all tests initiated by an impulsive shock wave resulted in the complete collapse of a steam-air pocket in the case of above 40 °C water tests. This collapse has two counter effects; suppression of vapor explosion by supplying non-condensable air and extra triggering source.
- A separate quenching experiment that employed a hot stainless steel ball was performed to investigate the thermal behavior of the molten droplet prior to the triggering process of the steam explosion. The experiments will provide a data set to verify the theoretical model for the film boiling process in the stage of development.
- The analyses on the vapor bubble dynamics and stability provided an insight of the molten droplet fragmentation and associated energy (pressure) generation. It was shown that approximately 70% of a molten droplet was finely fragmented after the second collapse of vapor bubble induced by the steam explosions.

**(2) POMEKO Program**

- The POMEKO experiments had shown that the presence of the control rod guide tubes offers a significant additional cooling capacity for the particulate debris bed, which leads to enhancement of the dryout heat flux and the quenching rate. Heat removal rate through CRGT structure was found to be 10-15 kW depending on the surrounding porous media and temperature regime. Water flow rates in the CRGT result in additional enhancement of the dryout heat flux and intensification of quenching process.
- The Lipinski model with addition of CRGT coolability potential was employed to analyze the POMEKO dryout experiments. Reasonable agreement between the experimental and calculated results was obtained.
- Characteristic times for quenching were computed by the model, which combines parameters of the process ( $V$ ,  $p_{\text{over}}$ ,  $T_{\text{sol}}$ ,  $T_w$ ,  $W$ ), geometry ( $A_{\text{bed}}$ ,  $d_{\text{dwnc}}$ ) and physical properties ( $H_{\text{fg}}$ ,  $C_{p,w}$ ,  $\rho_w$ ,  $\mu_w$ ,  $C_{p,\text{sol}}$ ,  $\rho_{\text{sol}}$ ,  $\epsilon$ ). Good agreement between experimental and calculated results has been achieved for the POMEKO experiments and the high temperature debris bed experiment at the COMECO facility.

**(3) COMECO Program**

- A series of experiments at the COMECO facility with the presence of a downcomer in the melt pool are being performed. The preliminary experimental findings indicate, that the pres-



ence of the downcommer reduces the melt pool layer quenching times. However, the effect of the downcommer is not as great as expected and as indicated by the previous series of POMEKO experiments for the particulate debris bed coolability. The experimental program will continue and the obtained results will be presented and analyzed.

- The analysis of previous set of COMECO experiments (with a control rod guide tube model in the test section) was carried out. The melt pool quenching times, crust growth and water ingress rates were analyzed.
- The analysis of the experimental results was carried out for various phases of the quenching process. The zero-dimensional model derived from the heat balance of the test section provides a good prediction for the quenching times, recorded during the COMECO experiments. It shows that the efficiency of the heat removal capacity offered by the CRGT's increases with the crust thickness. The bulk cooling resulted in high heat fluxes during the first moments of the experiments. The Farmer's model for the crust growth and water ingress provided good estimations of the measured processes.
- The COMECO experimental program will continue and the experimental database for the melt pool coolability with the presence of a downcommer will be compiled. Also, the analytical work in the melt coolability – related areas will be pursued.

#### **(4) SIMEKO Program**

- The SIMEKO experiments were restarted to investigate the melt pool convection in multi-layer configuration which has metallic melt layers on the top and bottom and oxidic melt layer in the middle of the melt pool. The experimental results were compared to those from the previous SIMEKO experiments with the uniform and two/layer melt pool configuration.

#### **(5) FOREVER Analysis**

- In initial few seconds, the data seems to be quite scattered due to melt eruption on water contact. The picture of melt surface after test shows formation of large number of small volcanic structures and also the whole of mass is moved towards center showing bulge at the center. This increases heat transfer area is more than 50%.
- The predicted heat flux at 7 bars is about  $2.0 \text{ MW/m}^2$ . The heat flux calculated from the experimental data obtained and considering solid surface area of melt, was  $2.0 \text{ MW/m}^2$ . If we consider real surface area (which will be higher than the area considered) then the heat flux calculated seems to be a over prediction, and actual heat flux may be lower than  $2.0 \text{ MW/m}^2$ .
- The energy liberated in initial 100 seconds calculated from melt pool temperature is 9.55 MJ and calculated from water evaporation rate is 11.15 MJ. This imbalance in heat can be justified with the heat content of the vessel and structures (including heater).
- Initial average mass flux obtained was  $0.38 \text{ kg/m}^2$  and average heat flux was  $0.88 \text{ MW/m}^2$ . These values are comparable to the values obtained in the MACE experiment, which are  $0.46 \text{ kg/m}^2$  and  $1.0 \text{ MW/m}^2$ .
- For the first 1 cm depth, the solidification front moves at rate of 0.1 cm/s and next 1 cm depth it moves at 0.035cm/s. The crack propagation or water ingress will be still slower and will be limited to certain depth of corium. In our experiments, the top crust formation was about 5 to 7 cm.

## **National and International Collaboration**

These studies will be continued in the current research program at RIT/NPS sponsored by the Swiss Federal Nuclear Inspectorate (HSK). The Swedish Nuclear Power Inspectorate (SKI) in

Sweden, the European Union, and Swedish and Finnish power companies also supported these research efforts

## Evaluation 2003 and outlook 2004

In 2003, several experimental programs in 2002, such as the COMECO (COrium MElt COolability), POMEKO (POrous MEdia COolability) and MISTEE (Micro-Interactions in STEam Explosion Experiments) programs were continued. The FOREVER (Failure Of REactor Vessel Retention) research project was completed in 2002. Significant technical advances were achieved during the course of these studies. These were:

- A series of experiments on single drop steam explosions was performed to investigate the fine fragmentation process of a metallic melt drop in various thermal conditions. For the first time, transient fine fragmentation process of a melt drop during explosion phase of a steam explosion was visualized continuously and quantified. Different triggering behavior with respect to the coolant subcooling was observed.
- The analyses on bubble dynamics during a single drop steam explosion and vapor bubble stability estimated the dynamic pressure generation and associated melt fragmentation. Approximately 70% of a melt drop was fragmented until the second bubble collapses during the steam explosion process.
- The quenching experiments employing a hot sphere, which dropped into coolant were performed to investigate the thermal behavior, e.g., direct contact boiling heat transfer, film boiling heat transfer etc., of the melt droplet prior to the triggering of steam explosion and consequently to provide the database to develop a theoretical model for the quenching boiling heat transfer.
- The POMEKO experiments revealed the significant additional cooling capability in the debris bed when the control rod guide tubes were used to inject cooling water, showing the enhancement of the dryout heat flux and quenching rates.
- The COMECO tests showed that the presence of downcomers enhanced the quenching of the molten pool, decreasing the solidification time. Between the top and bottom addition of water, the bottom cooling dominates the cooling process. In the case of cooling with no downcomer, a strong effect of the injected gas velocity on the quenching (solidification) process was obtained. The effect of the downcomer was not as significant as that indicated in the POMEKO tests.
- The SIMEKO experiments were restarted to investigate the melt pool convection in multi-layer configuration which has metallic melt layers on the top and bottom and oxidic melt layer in the middle of the melt pool. The experimental results were compared to those from the previous SIMEKO experiments with the uniform and two/layer melt pool configuration.
- The FOREVER-EC6 test in which water was injected on the top of the melt pool during the vessel creep was analyzed to investigate the important heat transfer parameters using the RELAP code. The analysis showed that the melt top and surface heat flux decreases with time due to the crust formation and that it is not possible to quench the melt pool with water flooding from top.

In 2004, most experimental programs performed in year 2003 will be continued. The SIMEKO (Simulation of MElt COolability) program was restarted in 2003 and will be continued in 2004. A larger version of the POMEKO (POrous MEdia COolability) facility is in the design stage in 2003 and will be built in 2004 wherein 3-D effects on debris coolability will be studied.

## References

The research program has resulted in many peer-reviewed publications in the year 2002. We are presenting here a selection which provides, (1) the description of the experimental program and results on melt droplet-water interaction, melt pool coolability, vessel creep and rupture; and (2) the description of the analysis models and results dealing with the thermal hydraulic behavior occurring during the melt-water interaction, melt pool coolability, and melt-vessel interaction processes.

1. Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Impulsive Shock Induced Single Drop Steam Explosion Visualized by High-Speed X-ray Radiography and Photography Metallic Melt," The 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH10), Seoul, Korea, Oct. 5~9, (2003).
2. Giri, A., Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Bubble Dynamics and Stability Analysis in Liquid-Vapor-Liquid System," The 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH10), Seoul, Korea, Oct. 5~9, (2003).
3. Park, H. S., Hansson, R. C., and Sehgal, B. R., "Fine Fragmentation Process observed by X-ray Radiography," The European-Japanese Two-Phase Flow Group Meeting, Siena, Italy, September 21~27, (2003).
4. Giri, A., Park, H. S., and Sehgal, B. R., "Analysis of Bubble Dynamics in Explosive Boiling of Droplet with Fine Fragmentation," The European-Japanese Two-Phase Flow Group Meeting, Siena, Italy, September 21~27, (2003).
5. Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Visualization of Dynamic Fragmentation of Molten Liquid Droplet in Liquid Coolant," The 2nd International Conference on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics (HEFAT-2003), Paper No. SB2, Victoria Falls, Zambia, 23-26 June, (2003).
6. Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Continuous High-Speed X-ray Radiography to Visualize Dynamic Fragmentation of Molten Liquid Droplet in Liquid Coolant," CD-Rom Proceeding of the 4th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing (PFSVIP4), PSFVIP4-4090, Chamonix, France, June 3~5, (2003).
7. Park, H. S., Hansson, R. C., and Sehgal, B. R., "Micro-interactions observed during Explosive Boiling in Liquid-Vapor-Liquid System," The 41th European Two-Phase Flow Group Meeting, Hurtigruten, Norway, May 12~14, (2003).
8. Giri, A., Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Bubble Dynamics and Stability Analysis in Liquid-Vapor-Liquid System," The 41th European Two-Phase Flow Group Meeting, Hurtigruten, Norway, May 12~14, (2003).
9. Park, H. S., Hansson R. C., and Sehgal, B. R., "Single Drop Melt Fragmentation Observed by High-Speed X-ray Radiography and Photography," CD-Rom Proceeding of the 11th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE11), ICONE11-36327, Keio Plaza Inter-Continental Shinjuku, Tokyo, Japan, April 20~23, (2003).
10. Konovalikhin, M.J., Jasiulevicius, A., Sehgal, B.R., "Debris bed coolability in the BWR pressure vessel", Proceedings of 6th ASME-JSME Thermal Engineering Joint Conference, Kohala Coast, Hawaii, USA, March 16-20, 2003.
11. Sehgal, B.R., Konovalikhin, M.J., Jasiulevicius, A., "Debris bed coolability in the BWR pressure vessel", Proceedings of HEFAT2003, 2nd Conference on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, Victoria Falls, Zambia, June 23-26, 2003.
12. Sehgal, B.R., Giri, A., Karbojian, A., Theertan, A., "Experiment on the lower head vessel failure under coupled melt pool convection and creep", Proceedings of HEFAT2003, 2nd Conference on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, Victoria Falls, Zambia, June 23-26, 2003.
13. Sehgal, B. R., Giri, A., Karbojian, A., Theertan, A., "Effect of penetration on the lower head vessel failure under coupled melt pool convection and creep", Proceedings of SMIRT 17 Conference, Czech Republic, August 2003.
14. Jasiulevicius, A., Sehgal, B. R., "COMECO experiments on molten pool coolability enhancement in the BWR lower head with CRGTs". Proceedings of NURETH-10 conference, Seoul, Korea, October 5-9, 2003.
15. Sehgal, B. R., "Stabilization and termination of severe accidents in LWRs" The 10th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH10), Seoul, Korea, Oct. 5-9, (2003).



Datum: 04.03.2003

Von: B. Faust

## Begutachtung 2003 für das Projekt OECD-MCCI

### Einleitung

Das Projekt Melt Coolability and Concrete Interaction (MCCI) wurde von den daran beteiligten Ländern Schweiz, Belgien, tschechische Republik, Finnland, Frankreich, Deutschland, Ungarn, Japan, Korea, Norwegen, Spanien, Schweden und der USA im Januar 2002 in Angriff genommen. Es ist befristet bis zum Dezember 2005.

Die vom Argonne National Laboratory (ANL), USA, erzielten Versuchsergebnisse erleichtern die Entwicklung von Modellen zur Kühlbarkeit der Kernschmelze, zum Containmentversagen und zur Optimierung der Strategien zum Unfallmanagement bei realen Reaktorbedingungen. Untersucht wird unter anderem die Kinetik der Interaktion von Kernschmelze mit der Betonstruktur des Containments bzw. die Erosion und Aushöhlung von Betonbestandteilen. Schliesslich möchte man die Wirksamkeit von Reaktorsicherheitsystemen testen um z.B. herauszufinden, wie sich ein Fluten des Hohlraums unterhalb des Druckbehälters beim Austritt von Kernschmelze aus dem Druckbehälter auswirkt.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

Bei den beiden Steering Committee Meetings vom 22.-23. Mai 2003 in Garching, Deutschland und vom 15.-16. Dezember in Argonne, USA, wurden folgende Versuchsergebnisse besprochen:

#### Small-Scale Water Ingression and Crust Strength Tests (SWISSC-1 bis SWISSC-6)

Es handelt sich um transiente Versuche mit 75 kg thermitisch erzeugter 15 cm tiefer Kernschmelze in der Kaverne bei einem Umgebungsdruck von 1 bzw. 4 bar. In den, mit variierendem Gewichtsanteil an kalkstein- (LCS) bzw. silikathaltigem (SIL) Beton durchgeführten Einzelversuchen werden Permeabilität, Porosität, Festigkeit und Zusammensetzung der Oberflächenkruste auf einer Kernschmelze ermittelt. Das Eindringen von Wasser in Risse und Brüche beeinflusst die Kühlbarkeit von mit Beton wechselwirkender Kernschmelze, massgeblich. Die Eindringrate des Wassers ergibt sich indirekt über einen Vergleich des tatsächlichen Wärmeübergangs (ermittelt über die Kondensationsrate des an den Wänden befindlichen Wasserdampfs) mit der errechneten kritischen Wärmestromdichte. Die makroskopische Festigkeit der "suspended crust" in der Reaktorkaverne hängt von der Menge und Zusammensetzung des sich in der Schmelze befindenden Betons ab, wobei ein geringerer Betonanteil die Kühlung erleichtert. Glasartiger, silikathaltiger Beton führt im Gegensatz zu kalksteinhaltigem zu duktilerem Verhalten, wodurch die Bruchspannung erhöht bzw. Rissbildung und Krustenbruch verzögert werden. Die für die Ermittlung der Wandfestigkeit vorgesehenen 4 bar erfordern zusätzliche Sicherheitsvorkehrungen. Auch klärt weder im Berichtsjahr durchgeführte Versuch SWISSC-5 noch der für das Frühjahr 2004 geplante SWISSC-6 (mit 4 statt 8 wt % Betonanteil) abschliessend, wodurch die Schmelzkühlung beeinflusst werden können. Dies sollen die „Melt Eruption Tests“ zeigen.

### Melt Eruption Tests (MET)

In den MET-Versuchen (grösserer Massstab und Schmelzmasse ca. 400 kg) soll die Kühlmöglichkeit von Bruchstücken ausserhalb des Reaktordruckbehälters durch vulkanartige Eruption bzw. Zerstörung der Oberflächenkruste untersucht werden. Massgeblich hierfür sind die Ausströmungsvorgänge abhängig von der chemischen Zusammensetzung der Kernschmelze. Da die letzten MSET-Versuche mit kalksteinhaltigem Beton durchgeführt wurden, sollen MET-1 (geplant für Ende 2004) und MET-2 (im Jahre 2005) silikathaltigen Beton verwenden.

### Large Scale Crust Failure Tests (LSC-Tests)

Eine instabile Oberflächenkruste lässt Kühlwasser leichter eindringen als eine stabile. In einem ersten Anlauf sollen deshalb in den SSWICS,- MET- und CCI-Tests sowohl Festigkeit, als auch Duktilität der Oberflächenkruste bei Raumtemperatur und höheren Temperaturen untersuchen (je nach Aggregatzustand ist ein unterschiedliches Verhalten zu erwarten). Danach sind Versuche in grösserem, aber aus kosten- und sicherheitstechnischen Gründen nicht im Massstab 1:1 geplant. Mit analytischen und numerischen Verfahren sollen die Simulationsergebnisse auf Originalmassstab extrapoliert werden. Voraussetzung hierfür ist, dass alle Versagensmechanismen der Kruste, wie z.B. Biege- oder Schubspannungen, naturgetreu abgebildet werden.

### 2D Molten Core Concrete Interaction Tests (CCI-Tests)

Der Test CCI-1 ergab Ergebnisse, die gut mit den Rechenergebnissen übereinstimmten. Dies war angesichts der durch einseitigen Betonabtrag hohen geometrischen Asymmetrie kaum erwartet worden! Über die Gültigkeit bzw. Auswertung dieses Tests wird derzeit noch diskutiert, um möglichst vor der Planung und Durchführung von Test CCI-2 schlüssige Ergebnisse vorweisen zu können. Zur Verringerung der Unsicherheiten bei den Daten zur Wechselwirkung zwischen Beton und Kernschmelze führte das Labor 2D MCCI Tests sowohl in einer ausgetrockneten, als auch kühlwassergefüllten Reaktorgrube (zuerst mit kalkstein- und dann mit silikathaltigem Betonzuschlag) durch. Die Vergleichsrechnungen waren je nach Computer Code, wie z.B. CORCON, COSACO MELCOR, sehr unterschiedlich.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Das Projekt OECD-MCCI hat zum Ziel, bisher angewandte Computercodes zu validieren und zu verbessern. Ferner soll das Management von schweren Unfällen effizient und effektiv gestalten werden können. Die Schweiz erhält Informationen über Kühlmöglichkeiten von Kernschmelztrümmern im Falle eines schweren Unfalls, über Eindringungsmöglichkeiten von Wasser in Risse und über Versagensmodi der Sicherheitshülle. Im Rahmen des Projektes wird ebenfalls studiert, wie Parameter (z.B. Festigkeit, Temperatur) möglichst wirklichkeitsnah angenommen sowie Unsicherheiten zuverlässig abgeschätzt und bewertet werden können,.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das internationale Programm wird in allen Teilbereichen fortgesetzt. Dies bedingt einen regen Austausch mit an diesem Projekt beteiligten Institutionen. Um ihren gesetzlich geforderten Aufgaben nachkommen zu können, möchte die HSK an den Steering Committee Meetings in Zukunft ebenfalls teilnehmen.



Datum: 4. Dezember 2003

Von: S. F. Schulz

## **Begutachtung 2003 für das Projekt OECD-OPDE**

### **Einleitung**

Das OPDE-Projekt (OECD Piping Failure Data Exchange Project) dient der Erstellung einer internationalen Datenbank über Vorkommnisse mit Rohrleitungsschäden in Kernkraftwerken. Mit dem Beitritt Belgiens seit Anfang 2003 sind daran nun 12 Länder beteiligt.

Ziel des Projektes ist es, eine umfassende und qualitätsgesicherte Datenbank über Rohrleitungsschäden in Kernkraftwerken weltweit zu erhalten und diese Erfahrungsdaten im Zusammenhang mit der Aufsicht über Rohrleitungssysteme in Schweizer Kernanlagen zu nutzen. Die vorgesehenen Anwendungsgebiete sind:

- Beurteilung von Pilotprojekten zu risiko-informierten Wiederholungsprüfprogrammen an Rohrleitungssystemen
- Zuverlässigkeitsanalysen von Rohrleitungssystemen
- Zusatzinformation bei der Festlegung/Beurteilung von Wiederholungsprüfplänen nach NE-14
- Bewertung von Schadensmechanismen in Alterungsüberwachungsprogrammen (AÜP)
- Beurteilung der Konstruktion und Werkstoffauswahl bei Änderungen oder neuen Rohrleitungssystemen
- Ableitung präventiver Massnahmen aufgrund Erfahrungsrückfluss

Die Datensammlung erfolgt über Nationale Koordinatoren und wird von einem Clearing House in einheitlicher Form zusammengeführt.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Die HSK konnte eine Reihe von Datensätzen für die Datenbank validieren und ergänzen und nahm 2003 an zwei Projekttreffen teil. Die OECD-Projektleitung und das Clearing House (technische Leitung) berichteten jeweils über den Stand des Projektes. Für die Schweiz wurde die Phase 1 des Projektes erfolgreich abgeschlossen und mit der Bearbeitung der Phase 2 begonnen. Die Schweizer Kernkraftwerke haben sich aktiv an der Validierung und Ergänzung der Datensätze beteiligt. Phase 1 des Projekts ist noch nicht bei allen beteiligten Nationen abgeschlossen, so dass Phase 1 und Phase 2 nun parallel bearbeitet werden.

Die nationalen Koordinatoren haben eine Vorversion der vollständigen Datenbank auf CD erhalten. Die Daten sind bisher nur zu einem Teil validiert, so dass sie noch nicht für Anwendungen freigegeben werden können. Die erste Sichtung der Daten lässt erwarten, dass die Datenbank für die vorgesehenen Anwendungsgebiete gut geeignet sein wird.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Das OPDE-Projekt gewinnt im sich wandelnden Umfeld der Kernenergie zunehmend Bedeutung für den Wissenserhalt und die Wissenserweiterung über das Alterungsverhalten der langlebigen Rohrleitungssysteme. Für die schweizerische Aufsichtsbehörde sind die Resultate der Datensammlung deswegen von besonderem Wert, weil sich damit der Zugang zu Informationen über eine grössere Anzahl Kernkraftwerke US-amerikanischer und deutscher Baulinien eröffnet. Die Aufsichtstätigkeit in den oben erwähnten Anwendungsgebieten kann damit besser abgestützt werden.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das Projekt befindet sich in der Mitte des auf drei Jahre angelegten Projektplanes. Die Arbeiten des kommenden Jahres werden sich auf das Ergänzen neuer Daten und die Validierung alter Daten konzentrieren. Daneben wird eine Verbesserung der Datenbankstruktur angestrebt, um die Anwendung der Datenbank zu erleichtern. Die Nationalen Koordinatoren werden regelmässig über den Fortschritt des Projektes informiert und können über eine passwortgeschützte Web-Site des Projektes auf die Dokumentation zugreifen.



Datum: 15. Januar 2004

Von: K. Theiss

## **Begutachtung 2003 für das ICDE-Projekt**

### **Einleitung**

Im Jahre 2003 fanden zwei Sitzungen der nationalen Koordinatoren statt (17. Sitzung in Paris, 18. Sitzung in Seoul). Es wurde an der Entwicklung einer neuen Datenbank und an der Erstellung zweier übergeordneter Berichte gearbeitet. Letztere informierten über Ergebnisse der Datenauswertung, über veröffentlichte Analyseberichte sowie wurden die Organisation, Verantwortlichkeiten, Grundsätze der Qualitätssicherung und der technische Umfang des ICDE-Projektes beschrieben. Aufgrund der Vielzahl der beteiligten Länder und deren Vertreter wurden zudem die Sitzungen neu strukturiert, um diese effektiver zu gestalten.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

In den beiden letzten Jahren wurde aufgrund der steigenden Anzahl von Teilnehmerländern am ICDE-Projekt sowie des zunehmenden Datenmaterials die Arbeitsweise gestrafft. Hiervon betroffen war insbesondere die Zusammenarbeit zwischen den nationalen Koordinatoren (sog. Steering Group) und dem für Detailaufgaben beauftragten externen Spezialisten (sog. Clearing House). Obwohl klare Vorgaben für die Zusammenarbeit erarbeitet wurden, konnte wegen des hohen Arbeitsaufwandes das vorrangige Projektziel, nämlich die Sammlung von Common-Cause-Failure (CCF)-Daten und der Erfahrungsaustausch im Jahre 2003 nicht ganz erreicht werden. Ungeachtet dessen wurden mit der Erarbeitung neuer Coding-Guidelines und einer Strategie für die zukünftige Aktualisierung der in der Datenbank festgehaltenen CCF-Daten wichtige Vorarbeiten erledigt.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die Ergebnisse probabilistischer Sicherheitsanalysen zeigen, dass CCF das Risiko eines Kernkraftwerks entscheidend beeinflussen. Durch die getroffenen Gegenmassnahmen stellen CCF seltene Ereignisse in Kernkraftwerken dar, weshalb die internationale Auswertung und der Erfahrungsaustausch wesentlich sind. Das Projekt wird deshalb als wichtig beurteilt.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

In den kommenden Jahren wird der Schwerpunkt des Projektes auf der Aktualisierung der in der Datenbank festgehaltenen CCF-Daten und der Sammlung von CCF-Daten für neue Komponententypen (Schnellabschaltstäbe, Leistungsschalter) liegen.





Datum: 23.12.2003

Von: S. Brosi

## **Begutachtung 2003 für das Projekt "OECD-FIRE"**

### **Einleitung**

Ziel des Projektes "OECD Fire Incident Record Exchange" (OECD-FIRE) ist die Sammlung und Analyse von Daten zu Brandereignissen in Kernkraftwerken der OECD-Mitgliedstaaten. Es sollen die phänomenologische und statistische Basis für die Brandgefährdungsanalysen der werkspezifischen PSA-Studien verbessert werden.

An OECD-FIRE beteiligen sich verschiedenen OECD-Mitgliedstaaten, darunter Tschechien, Finnland, Frankreich, Deutschland, Japan, Schweden, USA, Spanien und die Schweiz. Die in OECD-FIRE von Brand-PSA-Experten dieser Staaten entwickelte Datenbank steht nur denjenigen Staaten zur Verfügung, die Daten beisteuern.

### **Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?**

Im Jahre 2003 konnten erste Datensätze vom Clearing House bearbeitet werden. Der Erfahrungsrückfluss aus dieser ersten Datenanalyse wurde für die Verbesserung der Codierungssystematik ("Coding Guidelines") genutzt. Damit wurde die Entwicklung Coding Guidelines erfolgreich abgeschlossen. Von der HSK wurden je zwei Brandereignisse aus der Zeit vor dem Jahr 2001 codiert und den entsprechenden Werken zum Korreferat zugeschickt.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

In der Schweiz unterhalten alle vier Kernkraftwerke werkspezifische Brand-PSA Studien. Diese Studien müssen auf eine ausreichende Datenbasis gestützt sein. Da Brandereignisse in Kernkraftwerken sehr selten sind, ist ein Zusammenschluss auf internationaler Basis zwingend notwendig.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Im Jahre 2004 sollen alle "historischen" Brandereignisse (Brandereignisse vor 2001) codiert und in die Datenbank aufgenommen werden. Damit wird eine erste Version der Datenbank zur Verfügung stehen. Zudem werden alle neu anfallenden Brandereignisse in Schweizer KKW gemäss der OECD-FIRE-Codierungssystematik erfasst und in die Datenbank eingebunden.



Datum: 16. März 2004

Von: W. Pauli

## Begutachtung 2003 für das Projekt NESC-III

### Einleitung

Das Forschungsprogramm NESC-III befasst sich mit der Strukturintegrität von Mischverbindungen (Verbindungen z.B. zwischen ferritischen und austenitischen Teilen) in grossen Rohrleitungen, wie sie in den Kernkraftwerken für die Sicherheitsklassen 1 und 2 häufig vorkommen. In den vergangenen Jahren sind in solchen Mischnähten in ausländischen Anlagen vermehrt Schäden aufgetreten. Für die Beurteilung der Integrität, des Langzeitverhaltens und für bruchmechanische Analysen solcher Verbindungen fehlen die Kenntnisse der Eigenschaften und des Verhaltens. Das Projekt NESC-III ist ein Begleitprogramm zum Projekt ADIMEW, in welchem ein Bauteilversuch an einer typischen Mischverbindung unter Störfallbelastungen getestet wird. Die HSK hat sich zusammen mit zwei Partnern an dem Projekt NESC-III beteiligt.

Die Forschungsarbeiten erfolgen durch die Experten Basler & Hofmann, Zürich und Mat-Tec, Winterthur. Sie werden seitens der HSK von den Herren Ph. Tipping und W. Pauli begleitet. Die Arbeiten werden sehr gut geplant und mit hoher Fachkenntnis durchgeführt. Die Experten präsentierten die Resultate zweimal jährlich der HSK, wobei das weitere Vorgehen abgestimmt wird.

### Wurden die Projektziele des Jahres 2003 erreicht?

Die Experten haben im Rahmen von drei Task Groups mitgearbeitet und zwar:

TeilGruppe TG 2, Materials Characterisation (Mat-Tec)

TeilGruppe TG 3, Structural Analysis (B&H)

TeilGruppe TG 6, Residual Stress (Mat-Tec)

Umfangreiche bruchmechanische Berechnungen mit Hilfe der Finite Elementen Methode sollten das Verhalten der Mischverbindung unter Biegebelastungen im Bauteilversuch „im Rahmen einer Round Robin“ vorausberechnen. Die Resultate wurden durch die Bauteilversuche bestätigt.

Vor den Berechnungen sind die Werkstoffeigenschaften im Mischbereich präzise zu charakterisieren. Diese Erkenntnisse wurden anhand von Probestücken mit neuen Methoden ermittelt, welche von Mat-Tec im Zusammenhang mit dem Projekt NESC-III entwickelt und getestet wurden. Sie erlauben eine sehr detaillierte Charakterisierung wichtiger Werkstoffeigenschaften. Die Resultate haben wesentlich zum Verständnis der komplexen Werkstoffstrukturen und der Vorhersagen beigetragen.

Gleichzeitig sind im Rahmen der TG 6 neue Methoden zur Bestimmung von Restspannungen in Mischverbindungen entwickelt und erprobt worden. Die Kenntnis der Restspannungen stellt eine wesentliche Voraussetzung bei der Beurteilung der Bruchmechanikanalysen dar.

Die Resultate sind in drei Berichten festgehalten.

NESC-III – TG 2, Technischer Bericht TB 03-406

Quasi-zerstörungsfreie Prüfung mechanischer Werkstoffeigenschaften

NESC-III – TG 3, datiert 23. Dezember 2003

Mechanisches Verhalten einer rissbehafteten ferritisch / austenitischen Schweissnaht

NESC- III – TG 6, Technischer Bericht TB 03-401

Residual Stress measurement in Window-Piece AD01 by the Cut-Compliance Method

Die Zielsetzungen für das Jahr 2003 wurden damit voll erreicht. Es sind im Zusammenhang mit den für die Sicherheit der Primärkreis-komponenten relevanten Beurteilungskriterien wichtige Erkenntnisse gewonnen worden. Das Projekt ist international sehr gut abgestützt.

### **Wie schätzen Sie die Bedeutung des Projektes ein?**

Die sicherheitstechnische Aufsicht im Bereich des Primärkreises von Kernkraftwerken konzentriert sich, unter Berücksichtigung des Alters der bestehenden Kernkraftwerke, auf die Beurteilung des Zustands der schwer austauschbaren Komponenten. Dabei stellen aus heutiger Sicht die Ermüdung durch Temperatur- und Drucktransienten sowie die Risskorrosion und Korrosion die relevanten Schädigungsmechanismen dar. Zur Beurteilung der Auswirkungen des Dauerbetriebs und von Störfällen ist dabei das Verstehen der Schädigungsmechanismen aus wechselnder Last (Spannungen, Deformationen) sowie aus Risskorrosion und Korrosion von zentraler Bedeutung. Das Projekt NESC-III (in Verbindung mit dem Projekt ADIMEW) befasst sich dabei mit den Mischnähten, an welchen in jüngster Zeit Schäden durch Alterung in ausländischen Kernanlagen aufgetreten sind. Es werden für die Aufsicht wichtige Erkenntnisse zur Beurteilung des Zustandes von sicherheitsrelevanten Bauteilen und Methoden für die Vorhersage des Verhaltens bei Normalbetrieb und Störfällen gewonnen.

Die Mitwirkung an solchen internationalen Projekten ermöglicht es der HSK mit einem vertretbaren Mitteleinsatz ein Anrecht auf die Gesamtergebnisse zu erhalten. Die HSK hat in ihrer Forschungsstrategie die Kenntnis des Werkstoffverhaltens im Rahmen der Zustandsbeurteilung von sicherheitsrelevanten Komponenten mit hoher Priorität eingestuft. Das Projekt NESC-III trägt auch insgesamt zur Verbesserung des Standes von Wissenschaft und Technik in der Kerntechnik bei.

### **Ausblick und Verbesserungsvorschläge**

Das Forschungsprojekt geht in die Auswertungs- und Posttestphase, wobei alle Resultate und Berichte berücksichtigt werden. Die HSK wurde auf Grund der guten Beiträge eingeladen auch in dieser Phase in den drei TG's mitzuarbeiten und hätte damit Anrecht auf alle Berichte. Es liegen Projektanträge vor, die unmittelbar umgesetzt werden können. Die Projektbegleiter empfehlen eine Beteiligung im bisherigen Rahmen.